

(51) 国際特許分類7 G02B 5/02	A1	(11) 国際公開番号 WO00/34806  (43) 国際公開日 2000年6月15日(15.06.00)
(21) 国際出願番号 PCT/JP99/06703 (22) 国際出願日 1999年11月30日(30.11.99) (30) 優先権データ 特願平10/350446 1998年12月9日(09.12.98) JP 特願平11/246136 1999年8月31日(31.08.99) JP 特願平11/276554 1999年9月29日(29.09.99) JP 特願平11/280798 1999年9月30日(30.09.99) JP 特願平11/281452 1999年10月1日(01.10.99) JP 特願平11/284768 1999年10月5日(05.10.99) JP  (71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 株式会社 巴川製紙所 (TOMOEGAWA PAPER CO., LTD.)(JP/JP) 〒104-8335 東京都中央区京橋一丁目5番15号 Tokyo, (JP) (72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてののみ) 藤原 晃(FUJIWARA, Akira)(JP/JP) 三谷修治(MITANI, Shuji)(JP/JP) 〒421-0192 静岡県静岡市用宗巴町3番1号 株式会社 巴川製紙所 化成品事業部内 Sizuoka, (JP)		村田 力(MURATA, Chikara)(JP/JP) 〒421-0192 静岡県静岡市用宗巴町3番1号 株式会社 巴川製紙所 情報メディア事業部内 Sizuoka, (JP) (74) 代理人 末成幹生(SUENARI, Mikio) 〒104-0031 東京都中央区京橋二丁目6番14号 日立第6ビル4階 Tokyo, (JP)  (81) 指定国 KR, US  添付公開書類 国際調査報告書
(54)Title: FILLER LENS AND ITS MANUFACTURING METHOD (54)発明の名称 フィラーレンズ及びその製造方法  <div data-bbox="237 1320 1330 1623" data-label="Image"> </div> (57) Abstract A filler lens exhibiting an enough light diffusing ability to diffuse both the light incident on the film side and the light incident on the filler side and having a light transmittance better than those of conventional light diffusers having multiple filler layers and a method for manufacturing the same are disclosed. The filler lens comprises a base sheet (1), a bonding layer (2) formed on the base sheet (1) directly on the base sheet (1) or on another layer formed on the base sheet (1), and a filler layer (3A) embedded in the surface layer of the bonding layer (2), with a part of the filler layer (3A) projecting from the surface of the bonding layer (2). In the filler layer (3A), fillers (3) are densely arranged and form a single layer, and part of each of the fillers (3) projects from the surface of the bonding layer (2).		

本発明は、フィルム側とフィラー側の両方向からの入射光に対して、十分な光拡散性が発現され、フィラー層が複層である従来の光拡散体に比べて光透過性に優れたフィラーレンズおよびその製造方法を提供する。

シート状の基体（１）と、この基体（１）上に、直接または他の層を介して積層された結着層（２）と、この結着層（２）の表層に、当該結着層（２）の表面から一部が突出する状態で埋め込まれたフィラー層（３Ａ）とを備える。フィラー層（３Ａ）は、フィラー（３）が密に、かつ単層の状態で集合し、フィラー（３）の一部が結着層（２）の表面から突出している。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE アラブ首長国連邦	DM ドミニカ	KZ カザフスタン	RU ロシア
AL アルバニア	EE エストニア	LC セントルシア	SD スーダン
AM アルメニア	ES スペイン	LI リヒテンシュタイン	SE スウェーデン
AT オーストリア	FI フィンランド	LK スリ・ランカ	SG シンガポール
AU オーストラリア	FR フランス	LR リベリア	SI スロヴェニア
AZ アゼルバイジャン	GA ガボン	LS レント	SK スロヴァキア
BA ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB 英国	LT リトアニア	SL シェラ・レオネ
BB バルバドス	GD グレナダ	LU ルクセンブルグ	SN セネガル
BE ベルギー	GE グルジア	LV ラトヴィア	SZ スワジランド
BF ブルキナ・ファソ	GH ガーナ	MA モロッコ	TD チャード
BG ブルガリア	GM ガンビア	MC モナコ	TG トーゴ
BJ ベナン	GN ギニア	MD モルドヴァ	TJ タジキスタン
BR ブラジル	GW ギニア・ビサウ	MG マダガスカル	TZ タンザニア
BY ベラルーシ	GR ギリシャ	MK マケドニア	TM トルクメニスタン
CA カナダ	HR クロアチア	共和国	TR トルコ
CF 中央アフリカ	HU ハンガリー	マリ	TT トリニダード・トバゴ
CG コンゴ	ID インドネシア	MN モンゴル	UA ウクライナ
CH スイス	IE アイルランド	MR モーリタニア	UG ウガンダ
CI コートジボアール	IL イスラエル	MW マラウイ	US 米国
CM カメルーン	IN インド	MX メキシコ	UZ ウズベキスタン
CN 中国	IS アイスランド	NE ニジェール	VN ヴィエトナム
CR コスタ・リカ	IT イタリア	NL オランダ	YU ユーゴスラビア
CU キューバ	JP 日本	NO ノールウェー	ZA 南アフリカ共和国
CY キプロス	KE ケニア	NZ ニュー・ジーランド	ZW ジンバブエ
CZ チェッコ	KG キルギスタン	PL ポーランド	
DE ドイツ	KP 北朝鮮	PT ポルトガル	
DK デンマーク	KR 韓国	RO ルーマニア	

## 明 細 書

### フィラーレンズ及びその製造方法

#### 技術分野

本発明は、例えば、LCD、EL、FED等のディスプレイに好適に用いられ、特に、これらディスプレイの輝度ムラ防止、コントラスト向上、広視野角化に優れた効果を発揮するフィラーレンズおよびその製造方法に関する。

#### 背景技術

LCD、EL、FED等のディスプレイは、近年開発が目覚ましい。特に、LCDは、ノートパソコン、携帯端末等あらゆる分野に普及しており、将来への期待も大きい。このLCDは、液晶パネルを照明する光の取り入れ方式により、反射型と透過型とに大別される。反射型は、反射率の高いアルミニウム膜等を貼ったり、または蒸着した反射板を液晶パネルの背面に配し、ディスプレイ表面側から入射する外光を反射板で反射させて液晶パネルを照明し液晶画像を得る。一方、透過型は、液晶パネルの背面に配したバックライトユニットにより液晶パネルを照明する方式である。反射型にあっては、アルミニウムの地色が出てコントラストが悪化することを防ぐために、液晶パネルと反射板との間に光を適度に拡散する媒体を介装したり、マット加工（表面の粗面化処理）を施したフィルムのマット面にアルミニウムを蒸着したもの等を用いて光を拡散させることにより、背景色をペーパーホワイト色に近づけることが行われている。また、透過型におけるバックライトユニットは、一般に、冷陰極管を備えたアクリル導光板等の光源と、この光源の光を拡散する光拡散板とを備え、均一な面状の光が液晶パネルを照明する構成となっている。

このように、反射型、透過型のいずれの方式にあっても、概ね光拡散性の媒体（以下光拡散体と記す）は用いられている。この光拡散体としては、例えば、透明樹脂フィルムの片面に、光拡散性のフィラーが分散された結着樹脂を積層したものが挙げられる。このような従来の光拡散体は、結着樹脂に溶剤を混合した溶

液中にフィラーを分散させて塗料とし、この塗料をスプレーやコーターでフィルム上に塗工するといった方法で製造されていた。図 2 は、そのような製造方法で得られる光拡散体を模式的に示しており、フィルム 11 上に結着樹脂からなる結着層 12 が形成され、この結着層 12 中にフィラー 13 が分散している。

上記従来の光拡散体は、フィラー側からとフィルム側からの入射光による全光線拡散透過率および全光線拡散反射率または全光線透過率および全光線拡散率に大差なく、ほぼ同じ値を示し、光の入射方向によらず、光拡散性が同じであること、すなわち、指向性がないことが分かる。これは、フィラーが結着層中に完全に埋め込まれ、さらに、フィラーが厚さ方向に重なり複層の状態になっているからである。さらに、このような構成では、拡散した光が互いに打ち消し合う結果となるため、透過率が減衰（光エネルギーが損失）してしまう。

また、同じ様な光拡散性を示す媒体として、透明フィルムの片面上に、フォトリソグラフ等の方法でマイクロレンズを形成したレンズフィルムが提案されている。このレンズフィルムでは、レンズ側から光を入射した場合と、フィルム側から光を入射した場合で、大きな差があり、光拡散性に指向性があることが分かっている。この指向性を応用することで、例えば、上記反射型 LCD に搭載した場合など、外光を効率よく反射させ、高コントラストで明るい画像を得ることが可能となる。

このように、レンズ形状を有する光拡散体は、光拡散体として非常に好ましいことが理解される。しかしながら、フォトリソグラフは、 $1\text{ }\mu\text{m}$ 以下の微小レンズをつくるのには向いているが、それ以上大きなレンズ加工には不向きであり、レンズが小さすぎると、ニュートンリングが発生するためフォトリソグラフでは製造が困難となる。

そこで、本発明者らは、フィラーを結着層の表層に一部が突出するよう埋め込み、突出したフィラーが微細なレンズとなるような構成であれば、上記レンズフィルムと同様の指向性がある光拡散性（以下レンズ効果と記す）が発現されるのではないかと考え、次のような製造方法を試みた。それは、まずフィルム上に結着層を形成し、次いで結着層にフィラーを付着させ、その後、加圧ローラを用いて、該フィラーを結着層に埋め込むというものである。

この方法は、加圧ローラの圧力バランスが重要となるため、フィルム厚のバラツキや加圧ローラのしなり等で両端部と中央部に圧力差が生じて大きな圧力の加わった場所では、フィラーが必要以上に深く埋め込まれるためフィラー層が複層になり易い。一方、圧力が小さかった場所では、フィラーが結着層に十分埋め込まれないため余剰フィラーの洗浄工程等でフィラー抜け等の欠陥が発生し易い。この現象は、特に大きな面積で処理する場合に顕著であった。

また、粒子径が $15\mu\text{m}$ 以下のフィラーを埋め込む場合は、フィラーの比表面積が大きくなることにより、ファンデルワールス力等の粒子間力や摩擦帯電による電氣的付着力等の影響を受けて、フィラーの流動性が悪くなり、さらに、加圧ローラの圧力が分散し、個々のフィラーへ加わる圧力が低下するため、すでに結着層上に付着しているフィラーとフィラーと間隙に他のフィラーを均一な深さにまで埋め込むことができない。

以上の問題点から、フィラーの結着層への埋め込み深さのバラツキが大きく、また、面方向におけるフィラーの充填密度が不均一になり易く、粒子の充填密度が密な部分と粗な部分が発生し易い。そのため、場所により光の拡散性や透過性が異なる不均一なフィラーレンズとなり、実用上使用できるものではなかった。

図3(a)は加圧ローラを用いた上記製造方法により体積平均粒子径が $4.5\mu\text{m}$ のメチルシリコンフィラーを用いて製造したフィラーレンズの平面を10倍の対物レンズで撮影した光学顕微鏡写真であり、図3(b)は同フィラーレンズの断面を2000倍の倍率で撮影した電子顕微鏡写真である。図3(a)から、フィラーの充填密度が不均一で、部分的に複層になっていることがわかる。また、図3(b)からフィラーの結着層への埋め込み深さが不均一であることがわかる。

## 発明の開示

本発明は、光拡散性および光透過性が高く均一であり、フィラー層が複層である従来の光拡散体に比べて光透過性に優れたフィラーレンズおよびその製造方法を提供することを目的としている。

## 1. 第1実施形態

本発明の第1実施形態のフィラーレンズは、従来技術における上記した実情に鑑みてなされたもので、基体と、この基体上に、直接または他の層を介して積層された結着層と、この結着層の表層に、当該結着層の表面から一部が突出する状態で埋め込まれた多数のフィラーからなるフィラー層とを備えることを特徴としている。本実施形態によれば、フィラー層におけるフィラーの突出している部分が微細なレンズ形状を呈しているため、上述のレンズ効果を得ることが可能となる。

本発明のフィラーレンズにおけるフィラー層は、フィラーによるレンズ効果を顕著に得ることができる点で、結着層表層に単層で、フィラーの一部が結着層の表面から突出するように埋め込まれている構成が好ましく、さらに、一個一個のフィラーが、面方向で高密度に配置していることが好ましい。なお、本発明でいう単層とは、結着層の表面に突出したフィラーどうしが重なり部分をもたないで形成されていることを意味する。

図1は、本発明のフィラーレンズの一例を模式的に示した断面図である。このフィラーレンズLは、基体1上に結着層2が直接積層され、この結着層2の表層に、多数のフィラー3が、単層で、結着層2の表面から一部突出する状態で、さらに、面方向で高密度になるように埋め込まれることにより、フィラー層3Aが形成されている。また、本発明のフィラーレンズは、フィラー層の表面に、光拡散性を向上させるようなコーティングや他の層を形成してもよい。

次に、本発明のフィラーレンズの製造方法は、上記構成のフィラーレンズを製造するにあたって好適な製造方法であり、

①基体上に、直接または他の層を介して結着層を積層する工程、

②フィラーを加圧媒体によって結着層に埋め込む工程、

③前記工程で得た積層体に付着した余剰フィラーを除去する工程

を具備していることを特徴としている。また、②の工程の前に、フィラーを結着層上に付着する工程を行うことにより、フィラーの抜け等外観上の欠点が減少し、フィラーの埋め込みが確実にできることから好ましい。②のフィラーを結着層に

埋め込む具体的方法としては、加圧媒体を粒状物とし、この加圧媒体を振動させることにより、加圧媒体がフィラーを打撃して結着層に埋め込むといった形態が挙げられる。

本発明のフィラーレンズの製造方法によれば、フィラーの埋め込み深さが均一化され、フィラーが面方向に高密度で配置し、結着層表層に単層で、フィラーの一部が結着層の表面から突出するように埋め込まれている構成のフィラーレンズを製造することができる。

以下、本発明によって得られるフィラーレンズに好適な構成材料および製造方法について説明する。

#### A. 構成材料

##### (1) 基体

本発明に用いる基体としては、公知の透明なフィルムを使用することができる。具体的には、ポリエチレンテレフタレート (PET)、ポリエチレンナフタレート (PEN)、トリアセチルセルロース (TAC)、ポリアレート、ポリイミド、ポリエーテル、ポリカーボネート、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、セロファン、芳香族ポリアミド、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリビニルアルコール等からなる各種樹脂フィルムを好適に使用することができる。本発明の基体は、このようなフィルムに限定されず、上記樹脂からなる硬質板や、樹脂板以外にも石英ガラス、ソーダガラス等ガラス材料からなるシート状部材も用いることができる。

基体としては、光が透過されるものであれば非透明状物のものでもかまわないが、液晶ディスプレイに用いる場合等は、屈折率 (JIS K-7142) が 1.45 ~ 1.55 の範囲にある透明基体が望ましい。具体例には、トリアセチルセルロース (TAC) やポリメチルメタクリレート等のアクリル系樹脂フィルム等を挙げることができる。これら透明基体は、透明性が高いもの程良好であるが、全光線透過率 (JIS C-6714) としては 80% 以上、より好ましくは 85% 以上、さらに好ましくは 90% 以上のもの、ヘイズ (JIS K7105) としては、3.0 以下、より好ましくは 1.0 以下、さらに好ましくは 0.5 以

下のものが好適に使用できる。また、その透明基体を小型軽量の液晶ディスプレイに用いる場合には、透明基体はフィルムであることがより好ましい。透明基材の厚さに関しては、軽量化の観点から薄いほうが望ましいが、その生産性を考慮すると、 $1\mu\sim 5\text{mm}$ の範囲のものを使用することが好適である。さらに、基体の片面に集光性または拡散性を有するレンズを形成し、この基体の反対側の片面に、直接または他の層を介してフィラーレンズを形成することもできる。

## (2) 結着層

本発明における結着層は、例えば、粘着剤を上記基体上にコーティングして得られる粘着剤層が好適である。この粘着剤としては、アクリル系樹脂、ポリエステル樹脂、エポキシ樹脂、ポリウレタン系樹脂、シリコーン樹脂、フェノール樹脂、メラミン樹脂、尿素樹脂、ジアリルフタレート樹脂、グアナミン樹脂、アミノアルキッド樹脂、メラミン-尿素共縮合樹脂等の樹脂製粘着剤を挙げることができる。これらは、単独もしくは2種以上混合して使用してもよく、必要に応じて、重合促進剤、溶剤、粘度調整剤等を加えることもできる。これらの中でも特に、アクリル系樹脂は透明性がよく、耐水性、耐熱性、耐光性等に優れ、粘着力、さらに、液晶ディスプレイに用いる場合には屈折率をそれに適合するように調整しやすい等から好ましい。

アクリル系粘着剤としては、アクリル酸およびそのエステル、メタクリル酸およびそのエステル、アクリルアミド、アクリルニトリル等のアクリルモノマーの単独重合体もしくはこれらの共重合体、さらに、前記アクリルモノマーの少なくとも1種と、酢酸ビニル、無水マレイン酸、スチレン等の芳香族ビニルモノマーとの共重合体を挙げることができる。特に、粘着性を発現するエチレンアクリレート、ブチルアクリレート、2-エチルヘキシルアクリレート等の主モノマー、凝集力成分となる酢酸ビニル、アクリルニトリル、アクリルアミド、スチレン、メタクリレート、メチルアクリレート等のモノマー、さらに粘着力向上や、架橋化起点を付与するメタクリル酸、アクリル酸、イタコン酸、ヒドロキシエチルメタクリレート、ヒドロキシプロピルメタクリレート、ジメチルアミノエチルメタクリレート、ジメチルアミノメチルメタクリレート、アクリルアミド、メチロー



ルアクリルアミド、グリシジルメタクリレート、無水マレイン酸等の官能基含有モノマーからなる共重合体で、 $T_g$ （ガラス転移点）が $-60 \sim -15^\circ\text{C}$ の範囲にあり、重量平均分子量が20万～130万の範囲にあるものが好ましい。

$T_g$ が $-60^\circ\text{C}$ より低い結着層や重量平均分子量が20万未満の粘着剤からなる結着層では柔らかすぎて、一度付着したフィラーが加圧媒体の衝撃力により剥がされ、フィラー抜け等の欠陥が発生し易くなる。また、一度剥がされたフィラーには粘着剤が付着しており、そのフィラーが再度フィラー層上に付着してしまうこともある。さらに、柔らかすぎる結着層では、加圧媒体の衝撃によりフィラーが結着層の表面で縦方向に回転することによりフィラーの粘着剤が付着した部位がフィラー層の表面に現れ、そこに他のフィラーが付着したり、加圧媒体の衝撃力や毛細管現象により粘着剤がフィラーの間から染みあがり、そこに他のフィラーが付着することがある。このような現象により、柔らかい結着層ではフィラー層が複層になり易く光透過性が低くなるので好ましくない。さらに、柔らかい結着層ではフィラー層の耐スクラッチ性等の機械的強度も低下する。一方、 $T_g$ が $-15^\circ\text{C}$ より高い結着層や、重量平均分子量が130万より大きい結着層では、フィラーの結着層への付着力が低下し、余剰フィラーを洗浄する工程等においてフィラーの脱落が発生しやすくなるので好ましくない。

また、本発明に用いる粘着剤の粘度は、粘着剤を酢酸エチルに全固形分濃度が25%になるように溶解し、液温 $23^\circ\text{C}$ における粘度をB型粘度計により測定した値で、 $500 \sim 20000 \text{ cps}$ の範囲が好ましく、より好ましくは $1500 \sim 5000 \text{ cps}$ の範囲が良い。粘度が低過ぎるとフィラーが過度に埋め込まれやすくなり、粘度が高過ぎると埋め込まれ難い。さらに、この粘着剤の保持力（JIS Z 0237 11）は $0.5 \text{ mm}$ 以下が好ましい。この保持力が $0.5 \text{ mm}$ より大きいと、柔らかいため前述したようにフィラー層が複層になり易い。また、この粘着剤の粘着力（JIS Z 0237 8）は、 $100 \text{ g}/25 \text{ mm}$ 以上になるよう配合されると実用上好ましい。粘着力が $100 \text{ g}/25 \text{ mm}$ 未満ではフィラーの脱離が起きたり、耐環境性が悪くなったりする。特に、高温高湿下では、結着層が透明基体から剥離したりするおそれがある。

さらに、本発明に用いる粘着剤には、硬化剤として、例えば金属キレート系、

イソシアネート系、エポキシ系の架橋剤を必要に応じて1種あるいは2種以上混合して用いることができ、また、この粘着剤には光重合性モノマー、オリゴマー、ポリマーおよび光重合開始剤を加えたUV硬化性の粘着剤を用いても良い。これにより、粘着剤の特性を適宜調整することができ、フィラーを埋め込む工程の前にこの結着層を適度に硬化させる場合、硬化後のゲル分率は40%以上になるよう配合されると好ましく、より好ましくは60%以上が好適である。ゲル分率が40%未満では、高温高湿下では結着層が軟化し、フィラーが結着層中に沈み、光学特性が変化してしまう恐れがある。

### (3) フィラー

本発明のフィラーとしては、シリカ、ガラス、アルミナ等の無機フィラーや、アクリル樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリエチレン樹脂、エポキシ樹脂、シリコーン樹脂、ポリフッ化ビニリデン、テフロン、ジビニルベンゼン、フェノール樹脂、ウレタン樹脂、酢酸セルロース、ナイロン、セルロース、ベンゾグアナミン、メラミン等の有機フィラー等を使用することができるが、光透過性および結着層との密着性の観点から有機フィラーが好ましく、さらに耐光性の点でアクリルビーズ、シリコーンビーズが特に好ましい。さらに、フィラー層をより均一かつ高密度に形成するには、流動性の高いメチルシリコーン等のシリコーンビーズを用いることが最も好ましい。シリカやガラス等の無機フィラーでは結着層との密着性が悪いため、フィラー埋め込み工程や洗浄工程でフィラーが脱落しフィラー抜けが発生し易いため好ましくない。

フィラーは、前述したように球状であることが好ましく、球状フィラーは、埋め込み深さのばらつきが生じ難いというメリットもある。その真円度は、80%以上、より好ましくは85%、さらに好ましくは90%以上が良い。なお、本発明における「真円度」とは、下記一般式で定義される。

$$\text{真円度 (\%)} = (4\pi A / B^2) \times 100$$

A：フィラー粒子の投影面積

B：フィラー粒子の周囲長

この真円度は、例えばフィラー粒子を透過型電子顕微鏡で撮影して投影像を得、それを画像解析装置（例えば日本アビオニクス社製、商品名：EXECULI）を用いて画像解析することにより得た上記A、Bから算出することができる。上式から明らかなように、真円度は粒子が真球に近づけば100%に近くなり、不定形の場合はそれより小さな値となる。本明細書では、10個のフィラーについて測定した平均値を真円度とした。

また、本発明のフィラーの体積平均粒子径は、1～50  $\mu\text{m}$ 程度のものを使用することができるが、液晶ディスプレイ等に用いる場合は2～15  $\mu\text{m}$ が好適であり、2～10  $\mu\text{m}$ であればより好ましい。この場合、フィラーの粒子径が2  $\mu\text{m}$ よりも小さい場合には拡散された光どうしが干渉して虹色を呈するため液晶セルのコントラストが低下してしまうので好ましくない。一方、15  $\mu\text{m}$ よりも大きいフィラーの場合は、液晶画像のエッジ部がぼやけて視認性が低下することと、フィラー部とフィラーの間隙、すなわち、光拡散性の高い部位と低い部位が目視で見えるようになり、均一性が低下するので好ましくない。

さらに、フィラー層の平面方向における充填密度を高く均一にするとともに、フィラーの結着層への埋め込み深さをも均一にするためには、加圧媒体の衝撃力をフィラーに均一に伝える必要があり、そのためには、フィラーの粒径分布は0.8～1.0の範囲が好ましく、より好ましくは0.9～1.0であることが望ましい。また、高い光透過性を得るためには、フィラーの屈折率は、1.42～1.55の範囲にあることが好ましく、さらに、基材および結着層の屈折率とフィラーの屈折率の差が0.30以下であることが好ましく、より好ましくは、0.15以下がよい。

#### （4）他の層

本発明を構成する基体と結着層との間には他の層として、光の屈折率や透過性を調整するための調整層、または基体と結着層とを強固に接着させるための接着層等を設けてもよい。

## B. 製造方法

次に、本発明のフィラーレンズの製造方法の具体例を示す。

### 「結着層の積層工程」

上記基体の片面または両面に、直接あるいは他の層を介して、上記粘着剤を、エアドクターコーティング、ブレードコーティング、ナイフコーティング、リバースコーティング、トランスファロールコーティング、グラビアロールコーティング、キスコーティング、キャストコーティング、スプレーコーティング、スロットオリフィスコーティング、カレンダーコーティング、電着コーティング、ディップコーティング、ダイコーティング等のコーティングやフレキソ印刷等の凸版印刷、ダイレクトグラビア印刷、オフセットグラビア印刷等の凹版印刷、オフセット印刷等の平版印刷、スクリーン印刷等の孔版印刷等の塗布または印刷により、結着層として積層させる。特に、ロールコーターを使用するコーティングが、均一な層厚が得られることから好ましい。結着層の厚さは、埋め込むフィラーの平均粒子径の0.5～2倍、より好ましくは0.5～1.5倍が好ましい。

また、結着層に硬化剤成分が含まれる場合には、フィラーの結着層への埋め込みを調整するため、剥離PETフィルム等で結着層を保護した状態とし、20～80℃程度の温度で3～14日程度熟成させ、粘着剤と硬化剤とを反応させてから次工程に移ってもよい。

### 「結着層へのフィラーの付着工程」

次いで、基体上の結着層表面にフィラーを付着させる。その方法としては、例えば、容器内に充填したフィラーを振動もしくは流動化エアーにより流動化させ、そのフィラー中に基体をくぐらせたり、エアースプレーによりフィラーを結着層に吹き付けたりする方法が挙げられる。この時、有機フィラーは無機フィラーよりも流動性が高いため、エアースプレーの際の空気との混合や、容器内で流動化状態にさせ易く、結着層の表面に均一に付着させることができ好適である。結着層表面にフィラーを付着させることにより、フィラーの抜け等の欠点を少なくするとともに、後の加圧媒体によりフィラーを結着層に埋め込む工程において加圧媒体が結着層に付着することを防止することもできる。したがって、この工程

ではフィラーが結着層表面に、結着層の粘着力によって単に付着していればよい。

#### 「結着層へのフィラーの埋め込み工程」

結着層の表面に付着させたフィラーを、加圧媒体の衝撃力により結着層に埋め込む。その方法としては、適当な容器に加圧媒体を投入し、容器ごと加圧媒体を振動させ、この中に、フィラーが結着層表面に付着した状態の基体を投入するか、あるいはくぐらせることにより、フィラーに衝撃力を与える。すると、フィラーは加圧媒体により打撃され、結着層の表層に埋め込まれる。加圧媒体は微小面積でフィラーに均一な打撃を与えることができるので、フィラーを均一な埋め込み深さで結着層に埋め込むことができる特徴がある。この時、加圧媒体 100 重量部に対して 0.5 ～ 2.0 重量部程度のフィラーを予め混合した混合加圧媒体を用いると、前工程で結着層の表面に付着したフィラーの間隙に他のフィラーを加圧媒体の衝撃力により均一な深さに押し込むことが可能なため、フィラーの充填密度をより高く均一にすることができるので好適である。このような方法により、フィラーは、埋め込み深さが均一な状態で結着層の一部から突出し、かつ全体に高密度に埋め込まれ、結着層中において積層せず単層の状態のフィラー層として形成される。

なお、フィラーを埋め込むために与える外力としては、振動の他に、回転、落下等を採用してもよい。回転の場合には、回転容器や、内側に攪拌羽を有する容器等が用いられる。また、外力として落下を採用する場合には、Vブレンダー、タンブラー等が用いられる。

ここで、フィラーの埋め込みに用いる加圧媒体を例示する。加圧媒体は、上記のように振動等によりフィラーを打撃して結着層に埋め込む作用をなす粒状物であり、鉄、炭素鋼、合金鋼、銅および銅合金、アルミニウムおよびアルミニウム合金、その他の各種金属、合金からなるもの、あるいは、 $Al_2O_3$ 、 $SiO_2$ 、 $TiO_2$ 、 $ZrO_2$ 、 $SiC$ 等のセラミックスからなるもの、さらには、ガラス、硬質プラスチックス等からなるものが用いられる。また、十分な打撃力を粉体に与えることができるのであれば、硬質のゴムを用いてもよい。いずれにしても、加圧媒体の材質はフィラーの材質等に応じて適宜選択される。また、その形状は、

フィラーに対する加圧力が均一になるように真球に近いものが好ましく、かつ全体の粒子分布がなるべく狭い方が好ましい。加圧媒体の粒子径としては、フィラーの材質やフィラーの埋め込み深さに応じて適宜選択されるが、直径が概ね0.3～2.0 mm程度のものが好適である。

また、フィラーの埋め込み深さは、結着層からのフィラーの剥離が抑えられ、かつ結着層の表面から突出して確実にレンズ効果が発現され得るために、結着層に、直径の10～90%、好ましくは30～90%、より好ましくは40～80%埋め込まれていることが望ましく、レンズの光学特性に応じて、調整することが可能である。

#### 「余剰フィラーの除去工程」

結着層へのフィラーの埋め込み工程の後には、余剰フィラーを除去する。余剰フィラーとは、例えば、結着層へ不完全に埋め込まれていたり、埋め込まれたフィラーに静電気力やファンデルワールス力等の粒子間力によって付着しているだけのフィラー等を言い、このような余剰フィラーは、水洗浄やエアブロー等による流体圧をフィラー層に与えることにより除去することができる。この時、フィラーの粒子径が比較的小さい場合は、イオン交換水等を用いて湿式洗浄することが好ましい。さらに、フィラーの粒子径が小さい場合には、流体圧による除去のみでは不完全となり易いので、界面活性剤等が添加されたイオン交換水等の水溶液を用いて超音波洗浄等を行った後、イオン交換水等で十分にすすぎ、乾燥させることが好ましい。

さらに、前工程またはこの工程の後に熱や湿気を与え、積層体の結着層を軟化させる工程を行うと、フィラーと結着層とが馴染み、特に全光線透過率および信頼性が向上するので必要に応じて行うこともできる。軟化させる工程は、熱のみでも、熱と湿気とを併用しても良い。

また、本発明者らは、フィラーレンズの光学的特性をより向上させるために、フィラーの形態およびフィラーの周辺環境について鋭意研究を重ねた結果、より優れた光学特性を発揮する本発明のフィラーレンズの好適な実施形態を完成する

に至った。以下、本発明の第2実施形態から第6実施形態のフィラーレンズに好適な構成材料および製造方法について説明する。なお、第1実施形態と同様な組成、構成、および製造方法は省略し、各実施形態に特有な点についてのみを記載する。

## 2. 第2実施形態

本発明の第2実施形態のフィラーレンズは、均一な光拡散性と光透過性とを十分に得るために、体積平均粒子径が $2 \sim 15 \mu\text{m}$ である有機フィラーによりフィラー層を形成するものである。よって、本発明の第2実施形態のフィラーレンズは、基体と、この基体上に、直接または他の層を介して積層された結着層と、この結着層の表層に、当該結着層の表面から一部が突出する状態で埋め込まれた多数のフィラーからなるフィラー層とを備えるフィラーレンズであって、このフィラー層は、体積平均粒子径が $2 \sim 15 \mu\text{m}$ の有機フィラーからなることを特徴としている。

この有機フィラーの体積平均粒子径は $2 \sim 15 \mu\text{m}$ 、好ましくは $2 \sim 10 \mu\text{m}$ がよい。有機フィラーの体積平均粒子径が $2 \mu\text{m}$ よりも小さい場合には、拡散された光どうしが干渉して虹色を呈するため液晶セルのコントラストが低下する。一方、 $15 \mu\text{m}$ よりも大きい有機フィラーの場合は、木目の荒い拡散光となり、液晶画像のエッジ部がぼやけて視認性が低下する。さらに、体積平均粒子径が $15 \mu\text{m}$ より大きい有機フィラーを用いた場合には、フィラーレンズの平面におけるフィラーの面積と、フィラーの間隙の面積、すなわち、光を拡散する部位と光を拡散しない部位の面積が共に大きくなり、それらが目視でも確認できるようになり、そのため液晶画像に輝度ムラが発生する。

また、有機フィラーの粒子径分布が狭いほど、本発明の製造方法における加圧媒体からの衝撃力を均一に有機フィラーに伝えることができるので、有機フィラーの結着層へ埋め込まれる深さが均一になり、また、同様の理由により、面方向の有機フィラーの充填密度も高く均一にすることができる。よって、加圧媒体からの衝撃力を均一に有機フィラーに伝えるためには有機フィラーの粒子径分布は $0.8 \sim 1.0$ が好ましく、より好ましくは $0.9 \sim 1.0$ であることが望まし

い。

なお、本発明では、「体積平均粒子径」は次のように定義され、「粒子径分布」は下記式で定義される。

粒子径分布＝個数平均粒子径／体積平均粒子径

・個数平均粒子径＝フィラーレンズの顕微鏡写真から無作為に抽出した100個の有機フィラーの直径を測定した平均値。

・体積平均粒子径＝先ず、フィラーレンズの顕微鏡写真から、無作為に抽出した100個の有機フィラーの直径を測定する。得られた有機フィラーの直径から、有機フィラーを真球とみなし個々の有機フィラーの体積を求める。次に個々の有機フィラーの体積を累積して100個の有機フィラーの合計体積を算出する。その後、100個の有機フィラーの中で最小体積の有機フィラーから最大体積の有機フィラーまで体積の大きさの順に体積を累積していき、その累積体積が上記の合計体積の50%となった粒子の直径。

このとき、有機フィラーの粒子が真球でない場合には、その最長径を有機フィラーの直径とする。

なお、本明細書では、フィラーレンズをキーエンス社製のデジタルマイクロスコープ（商品名：VH-6300）で撮影した透過光映像の写真を用いて測定した。

### 3. 第3実施形態

本発明の第3実施形態のフィラーレンズは、より均一な光拡散性と光透過性とを十分に得るために、フィラー層の面方向におけるフィラーの粒子間距離の標準偏差を0.4以下とするものである。よって、本発明の第3実施形態のフィラーレンズは、基体と、この基体上に、直接または他の層を介して積層された結着層と、この結着層の表層に、当該結着層の表面から一部が突出する状態で埋め込まれた多数のフィラーからなるフィラー層とを備えるフィラーレンズであって、このフィラー層の面方向におけるフィラーの粒子間距離の標準偏差が0.4以下であることを特徴としている。



この第3実施形態によれば、フィラー層における平面方向のフィラーの充填密度が高く均一であるため、従来のフィラーレンズよりも高く均一な光の透過性および拡散性能を発揮することができる。フィラーの粒子間距離の標準偏差が0.4よりも大きいものでは、光透過性が不均一となり、実用上十分な光拡散性能を得ることができない。

なお、本発明での「フィラーの粒子間距離」は、次の方法により測定した値である。まず、フィラーレンズを平面方向から垂直に撮影した写真を用いて、該写真から無作為に基点となるフィラーを抽出する。図4(a)は、フィラーレンズを平面方向から垂直に撮影した写真の模式図であり、この図においてはフィラーYが「フィラーの粒子間距離」を測定するための基点となるフィラーである。そして、この基点となるフィラーYの中心から全ての隣接する他のフィラーの中心へ直線を引き、その直線の長さを測定する。次に、この直線の長さをフィラーの体積平均粒子径（ここで体積平均粒子径をXとする）で割ったものをフィラーの粒子間距離とする。

ただし、この時、該直線が他のフィラーと接触するものや、フィラーの体積平均粒子径Xの半分以下の大きさのフィラーや、重複しているフィラーは、隣接する他のフィラーとはしない。また、フィラーの体積平均粒子径Xの半分以下の大きさのフィラーおよび重複しているフィラーは、基点となるフィラーとはしない。すなわち、図4(a)では、フィラーY1、フィラーY2、フィラーY4およびフィラーY5が隣接する他のフィラーである。フィラーY3は、基点となるフィラーYの中心からの直線x3がフィラーY2に接触するため、隣接する他のフィラーではない。また、フィラーY6およびY7は、フィラーの体積平均粒子径Xの半分以下の大きさであるから、隣接する他のフィラーではない。さらに、フィラーY8、Y9およびY10は、フィラーが重複しているため隣接する他のフィラーではない。

したがって、基点となるフィラーYにおける「フィラーの粒子間距離」は、基点となるフィラーYの中心からフィラーY1、フィラーY2、フィラーY4およびフィラーY5の各々の中心までの距離から求めることができ、直線x1の長さ/X、直線x2の長さ/X、直線x4の長さ/X、直線x5の長さ/Xが、基点

となるフィラーYにおける「フィラーの粒子間距離」である。

さらに、「フィラーの粒子間距離の標準偏差」は、上記測定方法により30個の基点となるフィラーについて「フィラーの粒子間距離」を測定し、これらの値から標準偏差を計算して求める。ただし、30個の基点となるフィラーの「フィラーの粒子間距離」を測定する場合、一度基点となるフィラーおよび隣接する他のフィラーとして特定し「フィラーの粒子間距離」を求めたフィラーは、再度基点となるフィラーおよび隣接する他のフィラーとして特定してはならない。また、図4(b)のように球形ではないフィラーの場合は、フィラーY11の最長径x11の中間点Pをそのフィラーの中心とする。なお、本明細書では、上記フィラーの粒子間距離の測定装置として、キーエンス社製のデジタルマイクロスコープ（商品名：VH-6300）の透過光映像写真を用いて、一画面に50～100個のフィラーが写る倍率で測定したものを用いた。

#### 4. 第4実施形態

本発明の第4実施形態のフィラーレンズは、光の拡散性および均一性をさらに向上させるために、結着層からのフィラーの突出割合を50%以上とし、結着層のゲル分率を60%以上としたものである。よって、本発明の第4実施形態のフィラーレンズは、基体と、この基体上に、直接または他の層を介して積層された結着層と、この結着層の表層に、当該結着層の表面から一部が突出する状態で埋め込まれた多数のフィラーからなるフィラー層とを備えるフィラーレンズであって、この結着層は、ゲル分率が60%以上であり、このフィラーの突出の割合が50%以上であることを特徴としている。

この第4実施形態によれば、特定の製造方法で製造することにより、図5(a)に示すように、フィラー3が面方向で高密度になるように埋め込まれ、かつ、フィラー3の突出の割合が50%以上であるフィラー層3Aが形成されており、十分な光の拡散性能が得られ、反射型液晶ディスプレイに用いた際に、アルミニウムの地色を抑えて優れたコントラストを奏することができる。

そのため、第4実施形態における結着層には、架橋点を有する樹脂と硬化剤を含有することが必要である。また、この結着層表面にフィラーを埋め込む際には、

結着層を十分に架橋させて、ゲル分率が60%以上とすることが好ましく、より好ましくは70%以上、最も好ましくは80%以上がよい。ゲル分率が60%未満の結着層では、柔らかいため、フィラーが深く埋め込まれるのでフィラーによる光拡散機能が十分に発揮されなくなる。一方、ゲル分率が60%未満の結着層では、耐環境性（信頼性）が悪く、特に、高温高湿環境下では、結着層が軟化し、フィラーが結着層中に深く沈み込むため、光拡散性が低下する。

なお、本発明における「ゲル分率」は、次のように測定することができる。

①任意の大きさのフィラーレンズの重量Aを測定する。

②フィラーレンズの基体を侵さないアルコール等の溶剤（例えばメタノール等）でフィラーレンズの結着層を膨潤させ、その後結着層を基体から分離する。（分離する方法としては、例えばヘラ等で掻き取ればよい。）

③結着層が分離された基体の重量Bを測定し、 $A - B$ を計算して結着層の重量Cを得る。

④基体から分離された結着層をアセトン中で常温常湿環境下24時間浸漬させた後、超音波分散機で攪拌する。攪拌後のアセトン中には結着層のゲル分と結着層中に含有されていたフィラーが混在している状態となる。

⑤アセトン中の結着層のゲル分とフィラーとを分離するため、ゲル分とフィラーが分離するような比重の液体（例えばクロロホルム等）をアセトン中に加え、フィラーを沈殿させ、一方ゲル分を浮遊させる。

⑥次に、アセトン中に浮遊されたゲル分を濾過、乾燥してその重量Dを測定する。一方、沈殿されたアセトン中のフィラーも濾過、乾燥してその重量Eを測定する。

⑦上記得られた各重量から下記式により本発明でいう「ゲル分率」を得ることができる。

$$\text{ゲル分率 (\%)} = D / (C - E) \times 100$$

結着層からのフィラーの突出の割合は、結着層からのフィラーの剥離が抑えられ、かつ、確実に光拡散性が発現され得るために50%以上であることが必要である。また、本発明でいうフィラーの突出の割合は、50～90%が好ましく、より好ましくは55～80%、最も好ましくは60～80%である。フィラーの

光拡散性能は、フィラーの突出の割合に大きく影響を受け、50%未満では著しく拡散性能が低下する。一方、突出割合が90%を超えると、余剰フィラーを除去する工程等でフィラーが結着層から脱離し易くなるため好ましくない。

本発明における「フィラーの突出の割合」とは、フィラー層の断面写真を解析することにより得ることができ、任意の30個のフィラーの突出の割合の平均値である。

すなわち、図5(b)にフィラー3が基体1上の積層された結着層2から突出するように埋め込まれた断面写真の模式図を示した。フィラーの突出の割合を得るには、図5(b)において、フィラー3と結着層2との界面aとbに直線をひき、フィラー3の中心線cと上記直線との交点dを得る。次にフィラー3の接線から交点dまでの長さYを求めて、フィラー3の直径Xから下記式により1個のフィラーの突出の割合を求めることができる。

$$1 \text{ 個のフィラーの突出の割合 (\%)} = Y / X \times 100$$

このようにして30個のフィラーの突出の割合を求めた後、その平均値から本発明でいう「フィラーの突出の割合」を求めることができる。

次に、上記構成の第4実施形態のフィラーレンズを製造するにあたって好適な製造方法について説明する。

- ①基体上に、直接または他の層を介して結着層を積層する工程、
- ②結着層を硬化させゲル分率を60%以上にする工程、
- ③フィラーを加圧媒体によってフィラーの突出の割合が50%以上となるように結着層に埋め込む工程、

④前記工程で得た積層体に付着した余剰フィラーを除去する工程を具備していることを特徴としている。この時、工程②の後に、フィラーを結着層上に付着させる工程を有することが好ましく、さらに、工程④の後に、熱等を与える乾燥工程を加えることもできる。熱や湿度を加えることにより、結着層とフィラーとが馴染み、光の透過性が向上するので好適である。また、この時、必要に応じて湿度を加えることもできる。以下、第4実施形態に特有な工程について説明する。

### 「結着層の硬化工程」

前記結着層の表面に剥離PETフィルム等の保護フィルムを貼り付けた後に、20～80℃程度の環境下に3～14日程度放置し結着層を硬化させ、ゲル分率が60%以上の結着層を得る。このとき、結着剤の硬化系としてUV硬化系を用いた場合は、UV照射により硬化させることもできる。

### 「結着層へのフィラーの埋め込み工程」

フィラーを結着層に埋め込む方法は、前記第1実施形態とほぼ同様であるが、第4実施形態においては、フィラーの突出の割合を50%以上としなければならない。

## 5. 第5実施形態

本発明の第5実施形態のフィラーレンズは、光透過性をより向上させるために、結着層の表面とフィラーとの境界部、すなわち、フィラー層におけるフィラーの周縁部に結着層の盛り上がり部分を設けたものである。よって、本発明の第5実施形態のフィラーレンズは、基体と、この基体上に、直接または他の層を介して積層された結着層と、この結着層の表層に、当該結着層の表面から一部が突出する状態で埋め込まれた多数のフィラーからなるフィラー層とを備えるフィラーレンズであって、このフィラーの周縁部に、結着層の盛り上がり部分を設けたことを特徴としている。

この第5実施形態によれば、特定の製造方法で製造することにより、図6(a)および(b)に示すように、フィラー3の周縁の結着層2に盛り上がり部分2aを有し、フィラーレンズの基体側からの入射光に対する光透過性を格段に向上させることができる。

次に、上記構成の第5実施形態のフィラーレンズを製造するにあたって好適な製造方法について説明する。

- ①基体上に、直接または他の層を介して結着層を積層する工程、
- ②フィラーを加圧媒体によって結着層に埋め込む工程、

③前記工程で得た積層体に付着した余剰フィラーを除去する工程、

④前記積層体の結着層を軟化させる工程

を具備していることを特徴としている。この時、工程①の後に、フィラーを結着層上に付着させる工程を有することが好ましい。また、工程③と④の順番は入れ替えることも可能である。そして、積層体の結着層を軟化させる工程を行うことによって、フィラーの周縁部に結着層の盛り上がり部分を設けることができる。

さらに、本発明の第5実施形態のフィラーレンズを製造するにあたっては、上記フィラー層の結着層を軟化させる工程を行うこと以外に、結着層を形成する樹脂として分子量が小さいものや、架橋密度の低いものを選択することによってもフィラーの周縁部に結着層の盛り上がり部分を設けることができるが、このような結着層を用いた場合はフィラー層の耐スクラッチ性等の機械的強度が低下すると同時に、高温高湿環境下に放置した場合等に粘着層のハジキや剥がれが発生し易くなる。以下、第5実施形態に特有な工程について説明する。

#### 「積層体の結着層の軟化工程」

積層体の結着層を軟化させる。軟化させる手段としては、結着層に熱または湿気を与える方法が挙げられる。結着層を軟化させるためには、結着層を構成する粘着剤や硬化剤の種類にもよるが、例えば、温度：30～80℃、湿度：60～95%RHに設定した恒温恒湿槽内に積層体を形成した基体を6時間～2週間程度放置することにより得られる。もちろん、熱のみにより軟化させても良いし、熱と湿気とを併用しても良い。

さらに、30～80℃に設定された環境下、例えば熱風や赤外線ヒーター等に積層体を形成した基体をさらしたり、電子線等を照射することによっても結着層を軟化させることができる。結着層を軟化させることにより、フィラー周辺部に結着樹脂による盛り上がり部分が形成され、特に、フィルム面からの光透過性が格段に向上する。

## 6. 第6実施形態

本発明の第6実施形態のフィラーレンズは、光学特性の信頼性、すなわち要求される特定の光学特性を安定に維持するため、硬化制限された硬化剤を結着層に含有し、これを適宜硬化させたものである。よって、本発明の第6実施形態のフィラーレンズは、基体と、この基体上に、直接または他の層を介して積層された結着層と、この結着層の表層に、当該結着層の表面から一部が突出する状態で埋め込まれた多数のフィラーからなるフィラー層とを備えるフィラーレンズであって、この結着層は、硬化制限された硬化剤により硬化されていることを特徴としている。

この第6実施形態によれば、結着層の形成の際の塗工液の硬化、またはこの層形成からフィラーの埋め込みまでの間の結着層の硬化を防ぎ、フィラーの埋め込み度を容易に調整することができ、さらに、フィラーを埋め込んだ後に結着層を硬化させることにより、高温高湿の条件下にあっても粘着剤の熱流動が生じることなく、フィラーの埋め込み度、すなわち光学特性を安定に維持することが可能となる。

また、第6実施形態においては、基体としてプラスチックフィルムを用いる場合には、硬化温度を高く設定することができないため、特に、PET、TACを使用する場合には、100℃以下で硬化できる樹脂を結着層に使用することが望ましい。

さらに、この結着層には、必須成分として硬化制限された硬化剤を用いる必要がある。この硬化制限された硬化剤としては、硬化に寄与する反応基が室温（常温～60℃程度）では硬化反応を生じないようにブロック化された硬化剤またはカプセル化された硬化剤等が挙げられ、例えば、ある特定温度以上の熱を加えることにより始めて硬化剤として作用するものを言う。具体的には、例えばイソシアネート系硬化剤の場合、イソシアネート基をアルコール類、フェノール類、ラクタム類、オキシム類等の適当な活性水素化合物（以後、ブロック剤と略称する。）でブロック（マスク）したブロックイソシアネート化合物が挙げられる。このブロックイソシアネート化合物は、攪拌器、温度計、還流冷却器を備えた反応器にポリイソシアネートを仕込み、これを攪拌しながらブロック剤を加え、70～8

0℃に加熱してブロック化反応を行うことにより調製することができる。

ブロック剤としては、エチレングリコールモノブチルエーテル、ジエチレングリコールモノブチルエーテル、トリエチレングリコールモノブチルエーテル、テトラエチレングリコールモノブチルエーテル、ペンタエチレングリコールモノブチルエーテル、エチレングリコールモノヘキシルエーテル、ジエチレングリコールモノヘキシルエーテル、エチレングリコールモノ-2-エチルヘキシルエーテル、ジエチレングリコールモノ-2-エチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテル、ジプロピレングリコールモノメチルエーテル、アリルアルコール、2-ヒドロキシエチルアクリレート、2-ヒドロキシプロピルアクリレート、2-ヒドロキシエチルメタクリレート等のヒドロキシアクリレート類化合物およびアセト酢酸アリル、マロン酸ジアリル等の二重結合を有する活性メチレン化合物等が挙げられる。これらの中でも、硬化時に塗膜の発砲等の問題を防ぐために、硬化温度以上の沸点を有するものが望ましい。

また、ブロックイソシアネート化合物を形成するイソシアネートとしては、2, 4-トリレンジイソシアネート、2, 6-トリレンジイソシアネート、2, 2'-ジフェニルメタンジイソシアネート、2, 4'-ジフェニルメタンジイソシアネート、キシレンジイソシアネート、フェニレンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート、水素化トリレンジイソシアネート、水素化ジフェニルメタンジイソシアネート、水素化キシレンジイソシアネート、モノメチルヘキサメチレンジイソシアネート、トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート、リジンイソシアネート、ドデカメチレンジイソシアネート等のジイソシアネート類や、これらジイソシアネート類のウレタン化物、ビュレット化物、イソシアヌレート化（トリマー化）物、カルボジイミド化物および重合物を挙げることができ、これらの化合物を単独で、または2種以上混合して用いることができる。

本実施形態において、硬化する前の結着層の粘着力（JIS Z0237による180度引き剥がし粘着力）が50～3000g/25mm、硬化後の粘着力が30g/25mm以下になるように配合されていることが実用上好ましい。硬化前の粘着力が50g/25mm未満の場合は、フィラーが埋め込み難くなっ



たり、埋め込んだフィラーが脱離したりする。逆に、粘着力が $3000\text{ g}/25\text{ mm}$ を越えると、フィラーが過度に埋め込まれたり、形成されるフィラー層の表面に傷や圧痕が付き易くなる。また、硬化後の粘着力が $30\text{ g}/25\text{ mm}$ を越えると、フィラー層表面に傷や圧痕が付き易くなったり、耐環境性が悪く、特に、高温高湿下において光学特性が変化するという問題を生ずるおそれがある。

次に、上記構成の第6実施形態のフィラーレンズを製造するにあたって好適な製造方法について説明する。

- ①基体上に、直接または他の層を介して結着層を積層する工程
- ②フィラーを加圧媒体によって結着層に埋め込む工程、
- ③結着層を硬化する工程
- ④前記工程で得た積層体に付着した余剰フィラーを除去する工程

を具備することを特徴としている。また、②の工程の前に、フィラーを結着層上に積層する工程を行うことにより、フィラーの抜け等外観上の欠点が減少し、フィラーの埋め込みが確実にできることから好ましい。以下、第6実施形態に特有な工程について説明する。

#### 「結着層の硬化工程」

フィラーを埋め込んだ結着層の粘着剤を熱硬化する。上記フィラーの埋め込み工程までは、粘着剤が柔らかく、フィラーの埋め込み深さをコントロールしやすいことが好ましいが、フィラーを埋め込んだ後には、フィラーレンズの光学的特性を維持するために、高温高湿下においても熱流動を生じないように硬化させる必要がある。

#### 図面の簡単な説明

図1は、本発明のフィラーレンズの一例を模式的に示す断面図である。

図2は、従来のフィラーレンズの一例を模式的に示す断面図である。

図3は、加圧ローラーを用いて製造したフィラーレンズの顕微鏡写真である。

(a)はフィラーレンズの平面を10倍の対物レンズで撮影した光学顕微鏡写真

であり、(b) はフィラーレンズの断面を 2 0 0 0 倍の倍率で撮影した電子顕微鏡写真である。

図 4 は、フィラーの粒子間距離を説明する図である。(a) はフィラーレンズを平面方向から垂直に撮影した写真の模式図であり、(b) は球形ではないフィラーの場合の模式図である。

図 5 の (a) は、本発明の第 4 実施形態のフィラーレンズを模式的に示す断面図であり、(b) は結着層から突出されたフィラーの割合を算出する方法を説明する図である。

図 6 の (a) は、本発明の第 5 実施形態のフィラーレンズを模式的に示す断面図であり、(b) はフィラー周縁部の拡大図である。

図 7 は、本発明のフィラーレンズを製造するにあたって好適な加振装置の正面断面図である。

図 8 は、本発明の試料 1-1 のフィラーレンズの平面を 1 0 0 0 倍 (a)、2 0 0 0 倍 (b)、5 0 0 0 倍 (c) で示す電子顕微鏡写真である。

図 9 は、本発明の試料 1-1 のフィラーレンズの断面を 2 0 0 0 倍 (a)、5 0 0 0 倍 (b) で示す電子顕微鏡写真である。

図 1 0 は、本発明の試料 1-2 のフィラーレンズの平面を 1 0 0 0 倍 (a)、2 0 0 0 倍 (b)、5 0 0 0 倍 (c) で示す電子顕微鏡写真である。

図 1 1 は、本発明の試料 1-2 のフィラーレンズの断面を 2 0 0 0 倍 (a)、5 0 0 0 倍 (b) で示す電子顕微鏡写真である。

図 1 2 は、フィラーレンズに対する入射光の方向を説明するための図であって、フィルム側からの入射光 (a) とフィラー側からの入射光 (b) を示す模式図である。

図 1 3 は、光散乱性の測定方法を説明するための図であって、全光線拡散透過率 (a)、全光線拡散反射率 (b) の測定方法を示す模式図である。

図 1 4 は、本発明の試料 2-1 のフィラーレンズの平面 (a) および断面 (b) を 1 0 0 0 倍で示す電子顕微鏡写真である。

図 1 5 は、本発明の試料 2-2 のフィラーレンズの平面 (a) および断面 (b) を 1 0 0 0 倍で示す電子顕微鏡写真である

図 16 は、本発明の試料 2-3 のフィラーレンズの平面 (a) および断面 (b) を 1000 倍で示す電子顕微鏡写真である。

図 17 は、本発明の試料 2-4 のフィラーレンズの平面 (a) および断面 (b) を 1000 倍で示す電子顕微鏡写真である。

図 18 は、本発明の試料 2-5 のフィラーレンズの平面 (a) および断面 (b) を 1000 倍で示す電子顕微鏡写真である。

図 19 は、比較用の試料 2-6 のフィラーレンズの平面 (a) および断面 (b) を 1000 倍で示す電子顕微鏡写真である。

図 20 は、比較用の試料 2-7 のフィラーレンズの平面 (a) および断面 (b) を 1000 倍で示す電子顕微鏡写真である。

図 21 は、比較用の試料 2-8 のフィラーレンズの平面 (a) および断面 (b) を 1000 倍で示す電子顕微鏡写真である。

図 22 は、本発明の試料 3-1 のフィラーレンズの平面 (a) および断面 (b) を 1000 倍で示す電子顕微鏡写真である。

図 23 は、本発明の試料 3-2 のフィラーレンズの平面 (a) および断面 (b) を 500 倍で示す電子顕微鏡写真である。

図 24 は、本発明の試料 3-3 のフィラーレンズの平面 (a) および断面 (b) を 500 倍で示す電子顕微鏡写真である。

図 25 は、比較用の試料 3-4 のフィラーレンズの平面 (密な領域 (a1)、粗な領域 (a2)) および断面 (b) を 1000 倍で示す電子顕微鏡写真である。

図 26 は、比較用の試料 3-5 のフィラーレンズの平面 (密な領域 (a1)、粗な領域 (a2)) および断面 (b) を 1000 倍で示す電子顕微鏡写真である。

図 27 は、比較用の試料 3-6 のフィラーレンズの平面を 500 倍で示す電子顕微鏡写真である。

図 28 は、比較用の試料 3-7 のフィラーレンズの平面を 500 倍で示す電子顕微鏡写真である。

図 29 は、比較用の試料 3-8 のフィラーレンズの平面 (a) および断面 (b) を 1000 倍で示す電子顕微鏡写真である。

図 30 は、本発明の試料 3-1 および比較用の試料 3-4 のフィラーレンズの

平面を50倍の対物レンズで透過光を用いて撮影した光学顕微鏡写真である。

図31は、本発明の試料4-1のフィラーレンズの平面(a)および断面(b)を2000倍で示す電子顕微鏡写真である。

図32は、本発明の試料4-2のフィラーレンズの平面(a)および断面(b)を2000倍で示す電子顕微鏡写真である。

図33は、比較用の試料4-3のフィラーレンズの平面(a)および断面(b)を2000倍で示す電子顕微鏡写真である。

図34は、比較用の試料4-4のフィラーレンズの平面(a)および断面(b)を2000倍で示す電子顕微鏡写真である。

図35は、本発明の試料5-1のフィラーレンズの平面(a)および断面(b)を5000倍で示す電子顕微鏡写真である。

図36は、本発明の試料5-2のフィラーレンズの平面(a)および断面(b)を5000倍で示す電子顕微鏡写真である。

図37は、比較用の試料5-3のフィラーレンズの平面(a)および断面(b)を5000倍で示す電子顕微鏡写真である。

図38は、本発明のフィラーレンズを透過型の液晶ディスプレイに適用した例を模式的に示す断面図である。

図39は、本発明のフィラーレンズを反射型の液晶ディスプレイに適用した例を模式的に示す断面図である。

図40は、本発明のフィラーレンズを光拡散レンズとして液晶ディスプレイに適用した例を模式的に示す断面図である。

## 発明を実施するための最良の形態

次に、本発明をより具体化した実施例を説明する。なお、下記において部とは重量部を示す。

### 1. 第1実施形態

#### (1) フィラーレンズの製造

##### 試料1-1

透明基体として、厚さ80 $\mu$ mのトリアセチルセルロース(商品名:富士タッ

クUVD80、富士写真フィルム社製、屈折率1.49)を用いた。このフィルムの片面上に、アクリル系粘着剤(商品名:SKダイン811L、総研化学社製、全固形分23%エチルアセテート溶解液)100部に対しイソシアネート系硬化剤(商品名:D-90、総研化学社製、全固形分90%エチルアセテート溶解液)を1.5部添加した塗料を、乾燥後の厚さが10 $\mu$ mになるようにリバースコーターで塗工、100℃で2分間乾燥し、結着層を形成した。

次に、フィラーとして、粒子径が5 $\mu$ mの単分散で、屈折率1.50のポリメチルメタクリレートからなるアクリル系フィラーを用い、このフィラーを、底部からエアーを噴出する多孔板容器に投入した。その後、この容器を振動させ、振動と噴出エアーの相乗効果によって、フィラーを流動化させる。結着層を表面に形成した上記フィルムを適宜時間をかけてくぐらせ、結着層の表面にフィラーを付着させた。

次いで、図7に示す加振装置により、結着層の表層にフィラーを埋め込みフィラー層を形成した。この加振装置は、加振機構V上にセットされた容器C内に、加圧媒体、フィラーおよび上記フィルムが投入され、これら投入物を、加振機構Vで容器Cごと振動させることにより、フィルムの結着層にフィラーを埋め込むものである。

容器Cは、硬質合成樹脂あるいは金属等の硬質材からなるもので、上部に開口部c1を有する椀状に形成されており、その底部c2の中央部には、上方に膨出して開口部c1と同程度の高さに達する柱状部c3が突設されている。一方、加振機構Vは、機台F上にコイルスプリングf1、f2を介して振動板f3が取り付けられ、振動板f3の上面中央部に上方に延びる垂直軸f4が突設され、振動板f3の下面中央部にモータf5が固定され、このモータf5の出力軸f6に重錘f7が偏心して取り付けられた構成となっている。容器Cは、振動板f3に置かれた状態で、柱状部c3の上端が垂直軸f4の上端に固定されることによりセットされ、モータf5が駆動されて重錘f7が回転すると加振されるようになっている。

この加振装置の容器C内に、加圧媒体として粒子径が0.5mmの真球状ジルコニア球を3kgを投入し、さらに、上記フィラーを30gを投入して両者を混

合した。次に、加振装置を、容器Cが図7に示す状態から45度傾く状態に保持して容器Cを振動させながら、上記フィルムを、フィラーが付着された結着層側を上方に向くようにして容器Cの底を30cm/分の速度で移動させることにより加圧媒体中にくぐらせた。これによって、フィラーを振動する加圧媒体により打撃して結着層の表層に埋め込み、フィラー層を形成した。

次に、イオン交換水を用いてフィラー層に水圧シャワーをかけてフィラー層を洗浄することにより余剰フィラーを除去し、この後、エアブローにより全体を乾燥させて本発明の試料1-1のフィラーレンズを得た。

#### 試料1-2

体積平均粒子径が15 $\mu$ mのフィラーを用いた点、および粒子径が1.0mmの加圧媒体を用いた点を変更点とし、これ以外は試料1-1と同様にして本発明の試料1-2のフィラーレンズを得た。

#### 試料1-3

下記成分からなる混合物をサンドミルにて30分間分散することによって得られた塗料を、膜厚80 $\mu$ m、透過率92%からなる透明基体のトリアセチルセルロース（商品名：富士タックUVD80、富士写真フィルム社製、屈折率1.49）の片面上に、リバースコーティング方式にて塗布し、100℃で2分間乾燥後、120W/cm集光型高圧水銀灯1灯で紫外線照射を行い（照射距離10cm、照射時間30秒）、塗工膜を硬化させた。このようにして図2に示すような従来型の光拡散フィルムを得て比較用の試料1-3とした。

・エポキシアクリレート系UV樹脂

（商品名：KR-566、旭電化社製、固形95%溶液） 95部

・架橋アクリルビーズ顔料

（商品名：MX150、綜研化学社製、粒径1.5 $\mu$ m $\pm$ 0.5） 10部

・イソプロピルアルコール

230部

## (2) フィラーレンズの評価

### ① フィラー層の観察

試料 1-1 および 1-2 のフィラーレンズの平面および断面を電子顕微鏡によって観察した。図 8 (a), (b), (c) は、それぞれ試料 1-1 のフィラーレンズの平面を 1000 倍、2000 倍、5000 倍の倍率で撮影した電子顕微鏡写真、図 9 (a), (b) は、それぞれ試料 1-1 のフィラーレンズの断面を 2000 倍、5000 倍の倍率で撮影した電子顕微鏡写真である。また、図 10 (a), (b), (c) は、それぞれ試料 1-2 のフィラーレンズの平面を 1000 倍、2000 倍、5000 倍の倍率で撮影した電子顕微鏡写真、図 11 (a), (b) は、それぞれ試料 1-2 のフィラーレンズの断面を 2000 倍、5000 倍の倍率で撮影した電子顕微鏡写真である。試料 1-1, 1-2 ともに、平面写真からわかるようにフィラーはほぼ均一に結着層中に密な状態で分散している。また、断面写真からわかるように、フィラーは、試料 1-1 の場合は直径の 70 % 程度が結着層に埋め込まれ、試料 1-2 では直径の 40 % 程度が埋め込まれた状態で、結着層の表面から一様に突出している。

### ② 光拡散性試験

上記試料 1-1 ~ 1-3 のフィラーレンズについて、図 12 (a) に示すように光をフィルム 1 側から入射させた場合と図 12 (b) に示すように光をフィラー 3 側から入射させた場合の全光線拡散透過率：T % と全光線拡散反射率：R % を、島津製作所製の分光光度計 UV 3100 を用いて測定した。

その測定方法は、全光線拡散透過率：T % については、図 13 (a) に示すように、入射光と基準白色板（硫酸マグネシウム）10 との間にフィラーレンズ L を介在させて前方に散乱した光の全光線拡散透過率を測定した。なお、図 13 (a) では図 12 (a) のようにフィルム側から光を入射させているが、図 12 (b) のようにフィラー側から光を入射させた場合も同様に行った。

また、全光線拡散反射率：R % は、まず、基準白色板（硫酸マグネシウム）に光をあてその後方に散乱した光の全光線拡散反射値を測定しその値を 100 とする。次に、図 13 (b) に示すように、フィラーレンズ L に光を入射して全光線

拡散反射値を測定し、上記基準白色板の全光線拡散反射値との割合で算出した。  
 なお、図 1 3 (b) では図 1 2 (a) のようにフィルム側から光を入射させているが、図 1 2 (b) のようにフィラー側から光を入射させた場合も同様に行った。  
 この場合の測定波長は 4 0 0 ~ 7 0 0 nm であり、測定値はこの波長領域の平均値で示した。その結果を、表 1 に示す。

表 1

	フィルム側からの入射光		フィラー側からの入射光	
	T%	R%	T%	R%
試料 1-1	62.2	45.3	99.8	24.8
試料 1-2	70.3	42.3	97.6	28.3
試料 1-3	91.3	26.7	91.4	26.5

表 1 によれば、試料 1 - 3 においては、光がフィルム側とフィラー側のいずれから入射しても、全光線拡散透過率は約 9 1 %、全光線拡散反射率は約 2 6 % と差はみられなかった。一方、試料 1 - 1、1 - 2 の光散乱性は、光の入射方向がフィルム側からとフィラー側からとで差が認められた。光がフィルム側から入射する場合の全光線拡散透過率は試料 1 - 3 より低い、全光線拡散反射率は高い。また、光がフィラー側から入射する場合の全光線拡散透過率はきわめて高く、逆に全光線拡散反射率は低い。すなわち、本発明のフィラーレンズによれば、光の入射方向が表裏いずれであるかによって光散乱性が異なり、レンズ効果が認められる。これを利用して目的に応じた光学的な特性を得ることが可能である。

## 2. 第 2 実施形態

### (1) フィラーレンズの製造

まず、本発明の第 2 実施形態において、粘着剤として結着層に用いたアクリルポリマー a について説明する。

温度計、攪拌機、還流冷却管、窒素導入管を備えたフラスコ中に n - ブチルアクリレート 9 4 重量部、アクリル酸 3 重量部、2 - ヒドロキシアクリレート 1 重量部、過酸化ベンゾイル 0 . 3 重量部、酢酸エチル 4 0 重量部、トルエン 6 0 重量部を加え、次いで窒素導入管から窒素を導入してフラスコ内を窒素雰囲気とし



た後、65℃に加温して10時間重合反応を行い、重量平均分子量約100万、 $T_g$ 約-50℃のアクリルポリマー溶液を得た。このアクリルポリマー溶液に固形分が20重量%となるようにメチルイソブチルケトンを加え、アクリルポリマーaを調製し、以下のフィラーレンズの結着層に用いた。

#### 試料2-1

透明基体として、厚さ80 $\mu$ mのトリアセチルセルローズ（商品名：富士タックUVD80、富士写真フィルム社製、屈折率1.49、全光線透過率92.4）を用いた。このフィルムの片面上に、アクリルポリマーaの100重量部に対しイソシアネート系硬化剤（商品名：L-45、綜研化学社製）を0.2重量部、エポキシ系硬化剤（商品名：E-5XM、綜研化学社製）を0.1重量部添加した結着剤を、乾燥後の厚さが3 $\mu$ mになるようにリバースコーターで塗工し、100℃で2分間乾燥し結着層を形成し、このフィルムをA5版の大きさに切断した。

次に、有機フィラーとして、体積平均粒子径が4.5 $\mu$ mで、粒子径分布が0.94、屈折率1.43、真円度96%のメチルシリコーンビーズ（商品名：トスパール145、GE東芝シリコーン社製）を用い、この有機フィラーを、底部からエアーを噴出する多孔板容器に投入した。その後、この容器を振動させ、振動と噴出エアーの相乗効果によって、有機フィラーを流動化状態にさせた。結着層を表面に形成した上記フィルムを適宜時間をかけてこの中をくぐらせ、結着層の表面にフィラーを付着させた。

次いで、上記第1実施形態と同様にして、結着層の表層に有機フィラーを埋め込みフィラー層を形成した後、イオン交換水に界面活性剤（商品名：リボノックスNC-95、ライオン社製）を加えた0.1重量%水溶液中に該フィラーレンズを浸漬しつつ超音波を与えることにより余剰な有機フィラーを洗浄除去した。これを水溶液から取り出し、イオン交換水で十分にすすいだ後、エアーナイフにより表面の水切りをした。その後、40℃の恒温槽で5日間放置し、乾燥させた後、常温まで冷却し、本発明の試料2-1のフィラーレンズを得た。

た後、65℃に加温して10時間重合反応を行い、重量平均分子量約100万、 $T_g$ 約-50℃のアクリルポリマー溶液を得た。このアクリルポリマー溶液に固形分が20重量%となるようにメチルイソブチルケトンを加え、アクリルポリマーaを調製し、以下のフィラーレンズの結着層に用いた。

#### 試料2-1

透明基体として、厚さ80 $\mu$ mのトリアセチルセルロース（商品名：富士タックUVD80、富士写真フィルム社製、屈折率1.49、全光線透過率92.4）を用いた。このフィルムの片面上に、アクリルポリマーaの100重量部に対しイソシアネート系硬化剤（商品名：L-45、綜研化学社製）を0.2重量部、エポキシ系硬化剤（商品名：E-5XM、綜研化学社製）を0.1重量部添加した結着剤を、乾燥後の厚さが3 $\mu$ mになるようにリバースコーターで塗工し、100℃で2分間乾燥し結着層を形成し、このフィルムをA5版の大きさに切断した。

次に、有機フィラーとして、体積平均粒子径が4.5 $\mu$ mで、粒子径分布が0.94、屈折率1.43、真円度96%のメチルシリコーンビーズ（商品名：トスパール145、GE東芝シリコーン社製）を用い、この有機フィラーを、底部からエアーを噴出する多孔板容器に投入した。その後、この容器を振動させ、振動と噴出エアーの相乗効果によって、有機フィラーを流動化状態にさせた。結着層を表面に形成した上記フィルムを適宜時間をかけてこの中をくぐらせ、結着層の表面にフィラーを付着させた。

次いで、上記第1実施形態と同様にして、結着層の表層に有機フィラーを埋め込みフィラー層を形成した後、イオン交換水に界面活性剤（商品名：リポノックスNC-95、ライオン社製）を加えた0.1重量%水溶液中に該フィラーレンズを浸漬しつつ超音波を与えることにより余剰な有機フィラーを洗浄除去した。これを水溶液から取り出し、イオン交換水で十分にすすいだ後、エアーナイフにより表面の水切りをした。その後、40℃の恒温槽で5日間放置し、乾燥させた後、常温まで冷却し、本発明の試料2-1のフィラーレンズを得た。

## 試料 2 - 2

試料 2 - 1 と同様のフィルムの片面上に、試料 2 - 1 の結着剤を乾燥後の厚さが  $3\text{ }\mu\text{m}$  になるようにリバースコーターで塗工し、 $100^{\circ}\text{C}$  で 2 分間乾燥して結着層を形成した後、このフィルムを A 5 版に切断した。その後の工程は、使用する有機フィラーを体積平均粒子径が  $2.6\text{ }\mu\text{m}$ 、屈折率 1.43、粒子径分布 0.90、真円度 94% のメチルシリコーンビーズ（商品名：トスパール 130、GE 東芝シリコーン社製）に変更した以外は、試料 2 - 1 と同様に行い本発明の試料 2 - 2 のフィラーレンズを得た。

## 試料 2 - 3

試料 2 - 1 と同様のフィルムの片面上に、試料 2 - 1 の結着剤を乾燥後の厚さが  $4\text{ }\mu\text{m}$  になるようにリバースコーターで塗工し、 $100^{\circ}\text{C}$  で 2 分間乾燥して結着層を形成した後、このフィルムを A 5 版に切断した。その後の工程は、使用する有機フィラーを体積平均粒子径が  $5.0\text{ }\mu\text{m}$ 、屈折率 1.50、粒子径分布 0.94、真円度 93% のメチルメタクリレートビーズ（商品名：MX-500、綜研化学社製）に変更した以外は、試料 2 - 1 と同様に行い本発明の試料 2 - 3 のフィラーレンズを得た。

## 試料 2 - 4

試料 2 - 1 と同様のフィルムの片面上に、試料 2 - 1 の結着剤を乾燥後の厚さが  $5\text{ }\mu\text{m}$  になるようにリバースコーターで塗工し、 $100^{\circ}\text{C}$  で 2 分間乾燥して結着層を形成した後、このフィルムを A 5 版に切断した。その後の工程は、使用する有機フィラーを体積平均粒子径が  $10.8\text{ }\mu\text{m}$ 、屈折率 1.50、粒子径分布 0.94、真円度 94% のメチルメタクリレートビーズ（商品名：MX-1000、綜研化学社製）に変更した以外は、試料 2 - 1 と同様に行い本発明の試料 2 - 4 のフィラーレンズを得た。

## 試料 2 - 5

試料 2 - 1 と同様のフィルムの片面上に、試料 2 - 1 の結着剤を乾燥後の厚さ

が6  $\mu\text{m}$ になるようにリバースコーターで塗工し、100℃で2分間乾燥して結着層を形成した後、このフィルムをA5版に切断した。その後の工程は、使用する有機フィラーを体積平均粒子径が14.9  $\mu\text{m}$ 、屈折率1.50、粒子径分布0.96、真円度92%のメチルメタクリレートビーズ（商品名：MX-1500H、綜研化学社製）に変更した以外は、試料2-1と同様に行い本発明の試料2-5のフィラーレンズを得た。

#### 試料2-6

試料2-1と同様のフィルムの片面上に、試料2-1の結着剤を乾燥後の厚さが3  $\mu\text{m}$ になるようにリバースコーターで塗工し、100℃で2分間乾燥して結着層を形成した後、このフィルムをA5版に切断した。その後の工程は、使用するフィラーを体積平均粒子径が4.1  $\mu\text{m}$ 、屈折率1.52、粒子径分布0.34、真円度67%のソーダガラス（商品名：MB-10、東芝バロティーニ社製）に変更した以外は、試料2-1と同様に行い比較用の試料2-6のフィラーレンズを得た。なお、このフィラーには不定形の粒子も含まれており、最長径を個々のフィラーの直径として測定した。

#### 試料2-7

試料2-1と同様のフィルムの片面上に、試料2-1の結着剤を乾燥後の厚さが15  $\mu\text{m}$ になるようにリバースコーターで塗工し、100℃で2分間乾燥して結着層を形成した後、このフィルムをA5版に切断した。その後の工程は、使用するフィラーを体積平均粒子径が21.0  $\mu\text{m}$ 、屈折率1.50、粒子径分布0.29、真円度94%のメチルメタクリレートフィラー（商品名：MR-20G、綜研化学社製）に変更した以外は、試料2-1と同様に行い比較用の試料2-7のフィラーレンズを得た。

#### 試料2-8

試料2-1と同様のフィルムの片面上に、試料2-1の結着剤を乾燥後の厚さが20  $\mu\text{m}$ になるようにリバースコーターで塗工し、100℃で2分間乾燥して

結着層を形成した後、このフィルムをA 5版に切断した。その後の工程は、使用するフィラーを体積平均粒子径が $29.3\mu\text{m}$ 、屈折率 $1.52$ 、粒子径分布 $0.23$ 、真円度 $94\%$ のソーダガラス（商品名：GB-731、東芝バロティーニ社製）に変更した以外は、試料2-1と同様に行い比較用の試料2-8のフィラーレンズを得た。

## （２）フィラーレンズの評価

### ①フィラーレンズの観察

試料2-1～2-8のフィラーレンズのフィラー層の平面および断面を電子顕微鏡によって観察した。図14～21は試料2-1～2-8のフィラーレンズの平面および断面を $1000$ 倍の倍率で撮影した電子顕微鏡写真である。

図14～18からわかるように、試料2-1～2-5のフィラーレンズは面方向の充填密度が高く均一であり、さらに、結着層への埋め込まれ深さも均一である。一方、図19および図21から明らかなように試料2-6および2-8のフィラーレンズでは、余剰フィラーの洗浄工程等でフィラーが脱落した痕と思われる、脱落痕（図19および図21の図中央部の空隙部）が多数観察された。また、図20および21の試料2-7および2-8ではフィラーの体積平均粒子径が大きいので、フィラーおよびフィラーの間隙の面積が広がっていることが明白である。

### ②透過光の均一性の評価

試料2-1～2-8のフィラーレンズを透過光に透かして目視で観察し、透過光の均一性を評価した。A 5版全面において均一な場合は○、フィラー抜けやフィラーの間隙等、場所により光の透過性が異常に高い明るい個所や、フィラーが複層に存在するため光の透過性が異常に低く暗い個所が目視により確認できる場合は×とした。透過光の均一性の評価結果を表2に記した。

### ③透過光の木目の細かさの評価

試料2-1～2-8のフィラーレンズを透過光に透かして目視で観察し、透過

光の木目の細かさを評価した。透過光が滑らかに見える場合は○、ざらついて見える場合は×とした。透過光の木目の細かさの評価結果を表 2 に記した。

#### ④光学特性試験

試料 2-1 ～ 2-5 のフィルターレンズについて、図 12 (b) のように光をフィルター側から入射させた場合の全光線透過率： $T_t$  (%)、全光線拡散率： $H_z$  (%) を島津製作所製の分光光度計 UV 3100 を用いて測定した。測定結果を表 3 に記す。

なお、実用上ディスプレイ用としてフィルターレンズに要求される特性としては、輝度と視野角とのバランスがそのディスプレイの使用用途により異なるが、 $T_t$  は 70 % 以上、 $H_z$  は 60 % 以上が好適である。

表 2

	透過光の均一性	透過光の木目細かさ
試料 2-1	○	○
試料 2-2	○	○
試料 2-3	○	○
試料 2-4	○	○
試料 2-5	○	○
試料 2-6	×	×
試料 2-7	○	×
試料 2-8	×	×

表 3

	全光線透過率： $T_t$ (%)	全光線拡散率： $H_z$ (%)
試料 2-1	96.89	80.42
試料 2-2	96.31	71.26
試料 2-3	97.12	82.28
試料 2-4	96.97	88.07
試料 2-5	95.78	89.27

表 2 および表 3 から明らかなように、本発明のような構成を有するフィルターレンズの光学特性は全光線透過率、全光線拡散率共に実用上十分な値を示しており、

十分な光拡散性と透過性とを有している。そして、微小な有機フィラーを用いるため、均一で木目の細かな透過光を有していた。また、表3から有機フィラーの体積平均粒子径を変化させることにより、光の拡散性および透過性を変化させ調整することが可能であることが理解できる。

一方、試料2-6および2-8のように、無機フィラーを用いたフィラーレンズでは、結着層とフィラーとの密着性が悪いため、洗浄時にフィラーの脱落が発生し、そのため、その個所が異常に明るく透過光が不均一であった。また、試料2-7および2-8のように体積平均粒子径が $15\mu\text{m}$ より大きなフィラーを用いたものでは、透過光の木目が荒く、ディスプレイ用途には用いることができないレベルであった。

### 3. 第3実施形態

#### (1) フィラーレンズの製造

本発明の第3実施形態においても、上記第2実施形態で用いたアクリルポリマーaを粘着剤として結着層に用いた。

##### 試料3-1

透明基体として、厚さ $80\mu\text{m}$ のトリアセチルセルロース（商品名：富士タックUVD80、富士写真フィルム社製、屈折率1.49、全光線透過率92.4、ヘイズ0.15）を用いた。このフィルムの片面上に、アクリルポリマーaの100重量部に対しイソシアネート系硬化剤（商品名：L-45、綜研化学社製）を0.45重量部、エポキシ系硬化剤（商品名：E-5XM、綜研化学社製）を0.15重量部添加した粘着剤を、乾燥後の厚さが $5\mu\text{m}$ になるようにリバースコーターで塗工し、 $100^{\circ}\text{C}$ で2分間乾燥し結着層を形成し、このフィルムをA5版の大きさに切断した。

次に、フィラーとして、体積平均粒子径 $4.5\mu\text{m}$ 、粒子径分布0.94、屈折率1.43、真円度96%のメチルシリコンフィラー（商品名：トスパール145、GE東芝シリコン社製）を用い、このフィラーを、底部からエアーを噴出する多孔板容器に投入した。その後、この容器を振動させ、振動と噴出エアーの相乗効果によって、フィラーを流動化させる。結着層を表面に形成した上記

フィルムを適宜時間をかけてこの中にくぐらせ、結着層の表面にフィラーを付着させた。

次いで、上記第1実施形態と同様にして、結着層の表層にフィラーを埋め込みフィラー層を形成した後、イオン交換水に界面活性剤（商品名：リポノックスNC-95、ライオン社製）を加えた0.1重量%水溶液中に該フィラーレンズを浸漬しつつ超音波を与えることにより余剰なフィラーを洗浄除去した。これを水溶液から取り出し、イオン交換水で十分にすすいだ後、エアーナイフにより表面の水切りをした。その後、40℃の恒温槽で7日間放置し、乾燥させた後、常温まで冷却し、本発明の試料3-1のフィラーレンズを得た。

### 試料3-2

試料3-1と同様の透明基体フィルムの片面上に、試料3-1の粘着剤を乾燥後の厚さが5 $\mu$ mになるようにリバースコーターで塗工し、100℃で2分間乾燥して結着層を形成した後、このフィルムをA5版に切断した。その後の工程は、使用するフィラーを体積平均粒子径10.8 $\mu$ m、粒子径分布0.94、屈折率1.50、真円度94%のメチルメタクリレート（商品名：MX-1000、綜研化学社製）に変更した以外、試料3-1と同様に行い、本発明の試料3-2のフィラーレンズを得た。

### 試料3-3

試料3-1と同様の透明基体フィルムの片面上に、試料3-1の粘着剤を乾燥後の厚さが5 $\mu$ mになるようにリバースコーターで塗工し、100℃で2分間乾燥して結着層を形成した後、このフィルムをA5版に切断した。その後の工程は、使用するフィラーを体積平均粒子径14.9 $\mu$ m、粒子径分布0.96、屈折率1.50、真円度92%のメチルメタクリレート（商品名：MX-1500H、綜研化学社製）に変更した以外、試料3-1と同様に行い、本発明の試料3-3のフィラーレンズを得た。



#### 試料 3 - 4

試料 3 - 1 と同様の透明基体フィルムの片面上に、試料 3 - 1 の粘着剤を乾燥後の厚さが  $5\ \mu\text{m}$  になるようにリバースコーターで塗工し、 $100^\circ\text{C}$  で 2 分間乾燥して結着層を形成した後、このフィルムを A 5 版に切断した。次いで、試料 3 - 1 で用いたフィラーを試料 3 - 1 と同様に結着層に付着させた。次に、YBA 型ベーカーアプリーケーター（ヨシミツ精機社製）を用いてフィラー付着層の厚さが  $12.5\ \mu\text{m}$  になるように表面を均した。その後、加圧ローラー（商品名：Lamipacker PD3204、Fujipla Inc. 社製）を用いて、 $1.5\ \text{cm/秒}$  のスピードでフィラーの付着したフィルムを加圧ローラーに挿入してフィラーを結着層に埋め込んだ。その後の工程は試料 3 - 1 と同様に行い、比較用の試料 3 - 4 のフィラーレンズを得た。

#### 試料 3 - 5

試料 3 - 1 と同様の透明基体フィルムの片面上に、試料 3 - 1 の粘着剤を乾燥後の厚さが  $5\ \mu\text{m}$  になるようにリバースコーターで塗工し、 $100^\circ\text{C}$  で 2 分間乾燥して結着層を形成した後、そのフィルムを A 5 版に切断した。次いで、試料 3 - 1 で用いたフィラーを試料 3 - 1 と同様に結着層に付着させ、YBA 型ベーカーアプリーケーターを用いてフィラー付着層の厚さが  $12.5\ \mu\text{m}$  になるように表面を均した。次工程の加圧ローラーに挿入する際に、フィラーの付着した基材を、2 枚重ねた  $125\ \mu\text{m}$  厚の PET フィルムの上に挟み込むことによりローラーの圧力を高め、結着層にフィラーを埋め込んだ。その後の工程は試料 3 - 1 と同様に行い、比較用の試料 3 - 5 のフィラーレンズを得た。

#### 試料 3 - 6

試料 3 - 1 と同様の透明基体フィルムの片面上に、試料 3 - 1 の粘着剤を乾燥後の厚さが  $5\ \mu\text{m}$  になるようにリバースコーターで塗工し、 $100^\circ\text{C}$  で 2 分間乾燥して結着層を形成した後、このフィルムを A 5 版に切断した。次に、試料 3 - 2 のフィラーを用い、YBA 型ベーカーアプリーケーターのギャップを変更してフィラー付着層の厚さが  $25\ \mu\text{m}$  になるように表面を均した。その後の工程は試料

3-4と同様に行い、比較用の試料3-6のフィラーレンズを得た。

#### 試料3-7

試料3-1と同様の透明基体フィルムの片面上に、試料3-1の粘着剤を乾燥後の厚さが $5\mu\text{m}$ になるようにリバースコーターで塗工し、 $100^{\circ}\text{C}$ で2分間乾燥して結着層を形成した後、このフィルムをA5版に切断した。次に、試料3-3のフィラーを用い、YBA型ベーカーアプリーケーターのギャップを変更してフィラー付着層の厚さが $25\mu\text{m}$ になるように表面を均した。その後の工程は試料3-4と同様に行い、比較用の試料3-7のフィラーレンズを得た。

#### 試料3-8

試料3-1で用いた粘着剤の固形分100重量部に対して、試料3-1で用いたフィラーを10重量部添加し、アジターゼで1時間攪拌して塗料を作成した。作成した塗料を、試料3-1と同様の透明基体フィルムの片面上にコンマコーターで乾燥後の厚さが $25\mu\text{m}$ になるよう塗布し、乾燥してフィラー層を形成した。このフィラー層の表面に剥離PETフィルム（商品名：3811、リンテック社製）をラミネートし、 $40^{\circ}\text{C}$ の恒温槽中に1週間放置した後、常温まで冷却した。その後、A5版に切断し、剥離PETを剥がして、比較用の試料3-8のフィラーレンズを得た。

### (2) フィラーレンズの評価

#### ①フィラーレンズの観察

上記方法で得られた試料3-1～3-8のフィラーレンズの平面および断面を電子顕微鏡によって観察した。図22は試料3-1のフィラーレンズの平面および断面を1000倍で撮影した顕微鏡写真であり、(a)は平面、(b)は断面を示している。図23、24は試料3-2、3-3のフィラーレンズの平面(a)および断面(b)を500倍で、図25、26は試料3-4、3-5のフィラーレンズの平面(a)および断面(b)を1000倍で、図27、28は試料3-6、3-7のフィラーレンズの平面を500倍で、図29は試料3-8のフィラ

ーレンズの平面（a）および断面（b）を1000倍の倍率で撮影した電子顕微鏡写真である。

上記図22～24の（a）に示した平面写真からわかるように、試料3-1～3-3のフィラーレンズは面方向の充填密度が高く均一であり、また、図22～24の（b）の断面写真から、試料3-1～3-3のフィラーレンズでは、フィラー層は単層で、かつ、フィラーが結着層の表面から一部が突出した構成で均一な深さに埋め込まれていることが示された。これに対し、ローラーによってフィラーを結着剤層に埋め込んだ試料3-4～3-7のフィラーレンズでは、図25～28の平面写真に示すように、フィラーの充填密度が不均一であり、特に、試料3-4および3-5においては、フィラーの充填が密な領域（a1）や粗な領域（a2）が生じてしてしまうことが明らかとなった。このフィラーの充填密度が高い領域では、図25および26の（b）に示した断面写真から明らかなように、1層目のフィラーの間隙から露出した結着層に他のフィラーが付着したコロニーのような構成になっている部位が多数存在していた。これは、この部位に高い圧力が加わり、1層目のフィラーが結着層に深く埋め込まれ、フィラーの間隙に押し出された結着層に他のフィラーが付着したものと考えられる。

また、従来型のフィラーレンズである試料3-8では、図29の（a）に示すように、フィラーが完全に結着層中に埋没しており、さらに、（b）の断面写真によれば、フィラーが結着層中に複層に存在していることが観察された。

図30は試料3-1および3-4のフィラーレンズに透過光を用いた状態の50倍の光学顕微鏡写真である。この光学顕微鏡写真から明らかなように、フィラーの埋め込み深さが均一である試料3-1のフィラーレンズでは、光の透過性が均一であることが示された。一方、フィラーの結着層の埋め込み深さが不均一で、部分的にフィラーが重なっているような試料3-4のフィラーレンズでは、光の透過性が不均一であることが示された。

## ②フィラーの粒子間距離の測定

試料3-1～3-8のフィラーレンズの面方向のフィラー間距離をキーエンス社のデジタルマイクロスコプ（商品名：VH-6300）により測定した。体

積平均粒子径が $10\mu\text{m}$ 未満のフィラーを用いたフィラーレンズについては3000倍で、 $10\mu\text{m}$ 以上のフィラーを用いたフィラーレンズについては10000倍の倍率で、透過光を用いてフィラーの粒子間距離を測定し、その標準偏差を計算した。

### ③光学特性試験

試料3-1～3-8のフィラーレンズについて、図12(b)に示すように光をフィラー側から入射させた場合の全光線透過率： $T_t$  (%)、全光線拡散率： $H_z$  (%)を島津製作所製の分光光度計UV3100を用いて測定した。

### ④光の透過性および拡散性の均一性の評価

試料3-1～3-8のフィラーレンズを透過光に透かして目視で観察し、光透過性の均一性を評価した。均一な場合は○、場所により透過性が異常に高い明るい個所（透け）や透過性が低く暗い個所が存在する場合は×とし、光の透過性および拡散性の均一性を評価した。

以上の結果を表4に記した。

表4

	フィラー側からの入射光		フィラーの 粒子間距離の 標準偏差	透過光の 均一性 (目視)
	$T_t$ (%)	$H_z$ (%)		
試料 3-1	97.0	80.6	0.39	○
試料 3-2	97.3	88.0	0.33	○
試料 3-3	97.0	89.8	0.28	○
試料 3-4	94.8	74.0	0.45	×
試料 3-5	95.0	75.5	0.44	×
試料 3-6	95.6	82.6	0.48	×
試料 3-7	95.1	83.1	0.47	×
試料 3-8	89.8	63.9	測定不可能	○

表4から明らかなように、試料3-1～3-3のフィラーレンズにおけるフィラーの粒子間距離の標準偏差は0.4以下であるのに対し、試料3-4～3-7の標準偏差は0.4より大きい数値となっていた。また、試料3-8のフィラー

レンズでは、フィラーが結着層に完全に埋没しているため、透過光による光学顕微鏡ではピントを合わせることが不可能であり、フィラーの粒子間距離の測定ができなかった。

また、図1のような構造の試料3-1～3-7のフィラーレンズは、図2のようにフィラー層が複層である従来型の試料3-8のフィラーレンズよりも、全光線拡散率が高いにもかかわらず全光線透過率も高いので、光透過性と光拡散性に優れているといえる。さらに、試料3-1～3-3のフィラーレンズは、試料3-4～3-7のフィラーレンズと比較して、フィラーの充填密度が高く均一であり、かつ、均一な単層構造であるため、全光線透過率および全光線拡散率ともに高い値を示している。

#### 4. 第4実施形態

##### (1) フィラーレンズの製造

本発明の第4実施形態においても、上記第2実施形態で用いたアクリルポリマーaを粘着剤として結着層に用いた。

##### 試料4-1

透明基体として、厚さ80  $\mu\text{m}$ のトリアセチルセルロース（商品名：富士タックUVD80、富士写真フィルム社製、屈折率1.49）を用いた。このフィルムの片面上に、アクリルポリマーaの100重量部に対しイソシアネート系硬化剤（商品名：L-45、総研化学社製）を0.4重量部と、エポキシ系硬化剤（商品名：E-5XM 総研化学社製）0.2重量部とを添加した粘着剤を、乾燥後の厚さが5  $\mu\text{m}$ になるようにリバーコートで塗工、100℃で2分間乾燥した後、剥離PETフィルム（商品名：3811 リンテック社製）をラミネートし、40℃の恒温槽中に7日間放置し、結着層を硬化させた。このフィルムをA5版に切断し、剥離PETフィルムを剥がした。

フィラーとして、体積平均粒子径が4.5  $\mu\text{m}$ で粒子径分布が0.94、屈折率1.43、真円度96%のメチルシリコンからなるフィラー（商品名：トスパール145、GE東芝シリコン社製）を用い、このフィラーを、底部からエアーを噴出する多孔板容器に投入した。その後、この容器を振動させ、振動と噴

出エアーの相乗効果によって、フィラーを流動化させる。流動化状態のフィラー中に結着層を表面に形成した上記フィルムを適宜時間をかけてくぐらせ、結着層の表面にフィラーを付着させた。

次いで、上記第1実施形態と同様にして、結着層の表層にフィラーを埋め込みフィラー層を形成した後、イオン交換水に界面活性剤（商品名：リポノックスNC-95、ライオン社製）を加えた0.1重量溶液中に該フィラーレンズを浸漬しつつ超音波を与えることにより余剰なフィラーを洗浄除去した。これを水溶液から取り出し、イオン交換水で十分にすすいだ後、エアーナイフにより表面の水切りをした。その後、40℃の恒温槽で5日間放置し、乾燥させた後、常温まで冷却し、本発明の試料4-1のフィラーレンズを得た。このフィラーレンズの結着層のゲル分率は64%であった。

#### 試料4-2

試料4-1と同様のフィルムの片面上に、アクリルポリマーaの100重量部に対しイソシアネート系硬化剤（商品名：L-45、総研化学社製）を1.0重量部と、エポキシ系硬化剤（商品名：E-5XM、総研化学社製）0.5重量部とを添加した粘着剤を、乾燥後の厚さが5 $\mu$ mになるようにリバースコーターで塗工し、100℃で2分間乾燥した後に、剥離PETフィルム（商品名：3811、リンテック社製）をラミネートし、40℃の恒温槽中に7日間放置して結着層を硬化させた。このフィルムをA5版に切断し、剥離PETフィルムを剥がした。その後の工程は、試料4-1と同様に行い本発明の試料4-2のフィラーレンズを得た。このフィラーレンズの結着層のゲル分率は90%であった。

#### 試料4-3

試料4-1において、粘着剤の配合に硬化剤を全く用いない以外は同様に行い比較用の試料4-3のフィラーレンズを得た。このフィラーレンズの結着層のゲル分率は1%であった。

#### 試料 4-4

試料 4-1 において、粘着剤の配合を、アクリルポリマー a の 100 重量部に対しイソシアネート系硬化剤（商品名：L-45、総研化学社製）を 0.2 重量部と、エポキシ系硬化剤（商品名：E-5XM 総研化学社製）0.1 重量部に変更した以外は同様に行い比較用の試料 4-4 のフィラーレンズを得た。このフィラーレンズの結着層のゲル分率は 42% であった。

#### （2）フィラーレンズの評価

##### ①フィラー層の観察およびフィラーの突出の割合の測定

試料 4-1～4-4 のフィラーレンズの平面および断面を電子顕微鏡によって観察した。図 31～34 は、試料 4-1～4-4 のフィラーレンズの平面および断面を 2000 倍の倍率で撮影した顕微鏡写真である。

図 31 から試料 4-1 のフィラーレンズでは、フィラーの突出の割合が 55% となるように結着層から突出した状態で、フィラー層が均一な単層となっている。図 32 から試料 4-2 のフィラーレンズでは、フィラーの突出の割合が 66% となるように結着層から突出した状態で、フィラー層が均一な単層となっている。一方、図 33 から試料 4-3 のフィラーレンズでは、フィラーの突出の割合が 24% となるように結着層から突出した状態で、フィラー層が均一な単層となっている。図 34 から試料 4-4 のフィラーレンズでは、フィラーの突出の割合が 39% となるように結着層から突出した状態で、フィラー層が均一な単層となっている。

##### ②光学特性試験

上記試料 4-1～4-4 のフィラーレンズについて、図 12（b）に示すように光をフィラー 3 側から入射させた場合と、図 12（a）に示すようにフィルム 1 側から入射させた場合のヘイズ（全光線拡散率（Hz））%を島津製作所製の分光光度計 UV 3100 を用いて測定した。測定結果を表 5 に記した。

## ③信頼性試験

上記試料 4-1～4-4 のフィラーレンズを 60℃で 90%RH の高温高湿槽に 500 時間放置し、常温常湿下で 24 時間放置した後、図 12 (b) に示すように光をフィラー 3 側から入射させた場合と、同図 (a) に示すようにフィルム 1 側から入射させた場合のヘイズ（全光線拡散率（Hz））%を島津製作所製の分光光度計 UV 3100 を用いて測定した。測定結果を表 5 に記した。

## ④ペーパーホワイト性と均一性の確認

上記試料 4-1～4-4 のフィラーレンズについて、表面にアルミニウム蒸着を施した平板の上に、フィラー面が上向きになるように置き、目視によりペーパーホワイト性を確認した。背景がペーパーホワイトに近い場合は○、アルミニウムの地の色が出ている場合は×とした。この時、ペーパーホワイト色の均一性も目視により評価し、均一な場合は○、部分的にムラがある場合は×とした。ペーパーホワイト性、均一性の評価結果を表 5 に記した。

表 5

	ゲル分率 (%)	フィラーの 突出割合 (%)	フィラー側からの入射光 のヘイズ (%)		フィルム側からの入射光 のヘイズ (%)		ペーパー ホワイト性 (目視)	均一性 (目視)
			初期	信頼性試験 500 時間後	初期	信頼性試験 500 時間後		
試料 4-1	64	55	88.65	86.39	87.21	84.99	○	○
試料 4-2	90	66	89.54	89.31	88.67	88.53	○	○
試料 4-3	1	24	76.88	60.11	75.35	59.84	×	○
試料 4-4	42	39	80.32	69.79	78.98	68.22	×	○

表 5 によれば、試料 4-1, 4-2 のフィラーレンズでは、フィラー側、フィルム側のどちらの方向の入射光に対しても初期のヘイズは約 87～90%であり、実用上十分な光拡散性を有し、さらにペーパーホワイト性も良好であった。これに対し、試料 4-3, 4-4 のフィラーレンズでは、初期のヘイズは約 75～81%であり、ペーパーホワイト性が不十分であった。また、信頼性試験においては、試料 4-1, 4-2 のフィラーレンズでは、ヘイズの値の変化がほとんどなく信頼性は良好であった。一方、試料 4-3, 4-4 のフィラーレンズでは、ヘイズが 10～15%も低下しており、ディスプレイ等に用いるには困難であっ



た。

## 5. 第5実施形態

### (1) フィラーレンズの製造

本発明の第5実施形態においては、上記第2実施形態で重合させたアクリルポリマー溶液に、固形分が20重量%となるように酢酸エチルを加え、アクリルポリマーbを調製し、以下のフィラーレンズの結着層に用いた。

#### 試料5-1

透明基体として、厚さ80 $\mu$ mのトリアセチルセルロース（商品名：富士タックUVD80、富士写真フィルム社製、屈折率1.49）を用いた。このフィルムの片面上に、アクリルポリマーbの100重量部に対しイソシアネート系硬化剤（商品名：L-45、総研化学社製）を0.5重量部と、エポキシ系硬化剤（商品名：E-5XM 総研化学社製）0.2重量部とを添加した結着剤を、乾燥後の厚さが5 $\mu$ mになるようにリバースコーターで塗工、100℃で2分間乾燥して結着層を形成し、このフィルムをA5版の大きさに切断した。

フィラーとして、個数平均粒子径が4.5 $\mu$ mで粒子径分布が0.94、屈折率1.43、真円度96%のメチルシリコンからなるフィラー（商品名：トスパール145、GE東芝シリコン社製）を用い、このフィラーを、底部からエアーを噴出する多孔板容器に投入した。その後、この容器を振動させ、振動と噴出エアーの相乗効果によって、フィラーを流動化させる。流動化状態のフィラー中に結着層を表面に形成した上記フィルムを適宜時間をかけてくぐらせ、結着層の表面にフィラーを付着させた。

次いで、上記第1実施形態と同様にして、結着層の表層にフィラーを埋め込んでフィラー層を形成した後、界面活性剤（商品名：リボノックスNC-95、ライオン社製）をイオン交換水100重量部に対して0.1重量部添加した水溶液を用いて、フィラー層に水圧シャワーをかけてフィラー層を洗浄し、余剰フィラーを除去した後、イオン交換水で十分に濯いだ。その後、エアブローにより全体を十分に乾燥させた。

次に、上記結着層の表層に埋め込まれたフィラー層を有するフィルムを、60

℃に設定された恒温槽中に2日間放置して結着層を軟化させ、結着層とフィラーとを馴染ませることにより、フィラーの周辺部に結着層の盛り上がり部分を形成した。その後、恒温槽から取り出して自然冷却し、本発明の試料5-1のフィラーレンズを得た。

#### 試料5-2

試料5-1と同様のフィルムの片面上に、試料5-1と同様の結着剤を、乾燥後の厚さが5 $\mu$ mになるようにリバースコーターで塗工し、100℃で2分間乾燥した後に、剥離PETフィルム（商品名：3811、リンテック社製）をラミネートし、40℃の恒温槽中に1週間放置した後、剥離PETフィルムを剥がし、結着層を形成した。この後、このフィルムをA5版の大きさに切断した。

次いで、試料5-1のフィラーを用い、試料5-1のフィラーを付着させる工程および加圧媒体によって結着層にフィラーを埋め込む工程を行った。その後、試料5-1と同様の洗浄水溶液中に該積層体を投入し、超音波を与えることにより余剰フィラーを除去した後、イオン交換水を用いて十分に濯ぎを行い、エアードライヤーにより全体を乾燥させた。

次に、上記結着層の表層に埋め込まれたフィラー層を有するフィルムを、40℃および90%RHに設定された恒温高湿槽に3日間放置して結着層を軟化させ、その後、恒温高湿槽から取り出して自然冷却し、本発明の試料5-2のフィラーレンズを得た。

#### 試料5-3

結着層を軟化させる工程を除いた以外は、試料5-2と同様にして、比較用の試料5-3のフィラーレンズを得た。

### (2) フィラーレンズの評価

#### ① フィラー層の観察

試料5-1～5-3のフィラーレンズの平面および断面を電子顕微鏡によって観察した。図35～37は、試料5-1～5-3のフィラーレンズの平面および

断面を5000倍で撮影した顕微鏡写真である。図35, 36からわかるように、試料5-1, 5-2のフィラーレンズでは、フィラーの周縁部に結着層の盛り上がり部分を有し、フィラーが均一な単層で、かつ一部が突出しており、図6に示すような構成であった。また、図37からわかるように、試料5-3のフィラーレンズのフィラー周縁部には結着層の盛り上がり部分がない構成であった。

## ②光学特性試験

上記試料5-1～5-3のフィラーレンズについて、図12(a)に示すように光をフィルム1側から入射させた場合と図12(b)に示すように光をフィラー3側から入射させた場合の全光線透過率：Tt(%)とヘイズ(全光線拡散率)：Hz(%)を島津製作所製の分光光度計UV3100を用いて測定した。上記の測定結果を、表6に示す。

表6

	フィルム側からの入射光		フィラー側からの入射光	
	Tt %	Hz %	Tt %	Hz %
試料 5-1	92.12	78.42	96.68	79.69
試料 5-2	91.55	80.56	96.91	81.40
試料 5-3	75.18	80.62	96.83	80.95

表6によれば、フィルム側から入射した場合の全光線透過率は、試料5-1, 5-2のフィラーレンズでは約91～92%であるのに対して、試料5-3のフィラーレンズでは約75%であった。すなわち、試料5-1, 5-2のフィラーレンズのフィルム側からの入射光に対する光透過性は、試料5-3のフィラーレンズよりも16～17%も高いことが確認された。そして、ヘイズに関しては、試料5-1～5-3のフィラーレンズでは約78～81%であり、十分な光拡散性を有していた。一方、フィラー側からの入射光に対しては、試料5-1～5-3のフィラーレンズでは全光線透過率が約96～97%であり、非常に高い光透過性を有していた。また、ヘイズも約79～81%であり、十分な光拡散性を有していた。

すなわち、試料5-1, 5-2のフィラーレンズは、フィラー側の入射光に対

して従来品と同等の光拡散性と光透過性を有している。そして、フィルム側からの入射光に対しては十分な光拡散性を所持しつつ、従来品より約16～17%も透過性に優れていることが確認された。TACフィルム自体の全光線透過率が約92%でヘイズが約0.2%程度であることから、本発明のフィラーレンズは両方向からの入射光に対して、十分な光拡散性を持ちながら光透過性のロスがほとんどないことが確認された。

## 6. 第6実施形態

### (1) フィラーレンズの作製

まず、本発明の第6実施形態において、結着層に用いたブロックイソシアネート硬化剤について説明する。

還流冷却器、温度計および攪拌器を取り付けた四つ口フラスコに下記組成を仕込み、所望のイソシアネート含量に達するまでポリウレタン化を行い、次いで、ここにエチレングリコールモノ-n-ヘキシルエーテルを4部加えてイソシアネート基のブロック化反応を行い、ブロックイソシアネート硬化剤を調製し、以下のフィラーレンズの結着層用塗工液に用いた。

[ブロックイソシアネート硬化剤用配合]

・ポリジフェニルメタンジイソシアネート

(商品名：ミリオネートMR120、日本ポリウレタン工業社製) 45部

・2-ヒドロキシエチルアクリレート 31部

・酢酸ブチル 20部

### 試料6-1

透明基体として、厚さ80 $\mu$ mのトリアセチルセルロース（商品名：富士タックUVD80、富士写真フィルム社製、屈折率1.49）を用いた。このフィルムの片面上に、ディスパーにて15分間攪拌・混合した下記結着層用塗工液を、乾燥後の厚さが10 $\mu$ mになるようにリバースコーターで塗工し、100℃で2分間乾燥した後、30℃で1週間エージングを行い、結着層を形成した。

[結着層用塗工液の配合]

- ・ アクリル系粘着剤

(商品名：SKダイン1852、綜研化学社製、全固形分23%エチルアセテート溶解液)

100部

- ・ アクリル系化合物

トリペンタエリスリトールポリアクリレート

45部

- ・ 上記ブロックイソシアネート硬化剤

1.5部

- ・ イソプロピルアルコール

5部

- ・ メチルエチルケトン

210部

- ・ エチルアセテート

650部

次に、フィラーとして、粒子径が4.5  $\mu\text{m}$ の単分散で、屈折率1.45のメチルシリコーンからなるフィラーを用い、このフィラーを、底部からエアーを噴出する多孔板容器に投入した。その後、この容器を振動させ、振動と噴出エアーの相乗効果によって、フィラーを流動化させる。結着層を表面に形成した上記フィルムを適宜時間をかけてくぐらせ、結着層の表面にフィラーを付着させた。

次いで、上記第1実施形態と同様にして、結着層の表層にフィラーを埋め込みフィラー層を形成した後、上記フィルムの塗工膜を120℃で5分間加熱して熱硬化させた。その後、イオン交換水を用いてフィラー層に水圧シャワーをかけてフィラー層を洗浄することにより余剰フィラーを除去し、次いで、エアブローにより全体を乾燥して本発明の試料6-1のフィラーレンズを得た。

#### 試料6-2

結着層用塗工液におけるアクリル系化合物として、トリペンタエリスリトールポリアクリレートに代えてジペンタエリスリトールトリアクリレートを用いた以外は、試料6-1と同様にして、本発明の試料6-2のフィラーレンズを得た。

#### 試料6-3

下記成分からなる混合物をサンドミルにて30分間分散することによって得られた塗料を、膜厚80  $\mu\text{m}$ 、透過率92%からなる透明基体のトリアセチルセルロース（商品名：富士タックUVD80、富士写真フィルム社製、屈折率1.4

9) の片面上に、リバースコーティング方式にて塗布し、100℃で2分間乾燥後、120W/cm集光型高圧水銀灯1灯で紫外線照射を行い(照射距離10cm、照射時間30秒)、塗工膜を硬化させ、比較用の試料6-3のフィラーレンズを得た。

・エポキシアクリレート系UV樹脂

(商品名: KR-566、旭電化社製、固形分95%溶液) 95部

・架橋アクリルビーズ顔料

(商品名: MX150、綜研化学社製、粒径1.5 $\mu$ m $\pm$ 0.5) 10部

・イソプロピルアルコール 230部

#### 試料6-4

試料6-1の結着層用塗工液の組成を下記に代えた以外は、試料6-1と同様にして、比較用の試料6-4のフィラーレンズを得た。

[結着層用塗工液の配合]

・アクリル系粘着剤

(商品名: SKダイン811L、綜研化学社製、全固形分23%エチルアセテート溶解液) 100部

・イソシアネート系硬化剤

(商品名: D-90、綜研化学社製、全固形分90%エチルアセテート溶解液) 1.5部

#### (2) フィラーレンズの評価

##### ①フィラー層の観察

試料6-1、6-2のフィラーレンズのフィラーの埋め込み状態を電子顕微鏡によって観察したところ、フィラーはほぼ均一に結着層中に密な状態で分散していた。また、試料6-1の場合、フィラーは直径の70%程度が結着層に埋め込まれ、試料6-2では直径の40%程度が埋め込まれた状態で、結着層の表面で均一に突出していた。

## ②光拡散性試験

上記試料 6-1～6-4 のフィラーレンズについて、図 12 (a) に示すように光をフィルム 1 側から入射させた場合と図 12 (b) に示すように光をフィラー 3 側から入射させた場合の全光線拡散透過率：T%と全光線拡散反射率：R%を、島津製作所製の分光光度計 UV 3100 で積分球式を用いて測定した。

その測定方法は、全光線拡散透過率：T%については、図 13 (a) に示すように、入射光と基準白色板（硫酸マグネシウム）10 との間にフィラーレンズ L を介在させて前方に散乱した光の全光線拡散透過率を測定した。なお、図 13 (a) では図 12 (a) のようにフィルム側から光を入射させているが、図 12 (b) のようにフィラー側から光を入射させた場合も同様に行った。

また、全光線拡散反射率：R%は、まず、基準白色板（硫酸マグネシウム）に光をあてその後方に散乱した光の全光線拡散反射値を測定しその値を 100 とする。次に、図 13 (b) に示すように、フィラーレンズ L に光を入射して全光線拡散反射値を測定し、上記基準白色板の全光線拡散反射値との割合で算出した。なお、図 13 (b) では図 12 (a) のようにフィルム側から光を入射させているが、図 12 (b) のようにフィラー側から光を入射させた場合も同様に行った。この場合の測定波長は 400～700 nm であり、測定値はこの波長領域の平均値で示した。

## ③信頼性評価

上記試料 6-1～6-4 のフィラーレンズを高温高湿（80℃，90%）条件下に 3 日間放置し、その後、上記と同様に光拡散性の試験を行い耐高温高湿性、すなわち、高温高湿下における信頼性の評価を行った。

## ④粘着力評価

上記試料 6-1～6-4 の結着層用塗工液を PET フィルム上に塗布乾燥（乾燥塗布厚 10 μm）したものを用いて、JIS Z0237 に基づいて粘着力を測定した。なお、評価は硬化前と硬化後（硬化条件は試料 6-1 と同様）のそれぞれについて実施した。

これらの結果を、表 7 に示す。

表 7

	高温高湿下放置前				高温高湿下放置後				粘着力 (g/25mm)	
	フィルム側からの入射光		フィラー側からの入射光		フィルム側からの入射光		フィラー側からの入射光			
	T%	R%	T%	R%	T%	R%	T%	R%	硬化前	硬化後
試料6-1	73.1	42.8	98.3	26.4	71.9	43.0	98.1	26.0	250	80
試料6-2	67.8	41.6	97.7	24.3	66.9	41.1	96.6	23.7	230	70
試料6-3	91.3	26.7	91.4	26.5	91.1	26.2	91.4	26.3	20	0
試料6-4	75.4	38.7	92.9	25.0	80.1	31.6	89.8	27.6	600	200

表 7 によれば、フィラーを樹脂中に分散させた試料 6-3 においては、光がフィルム側とフィラー側のいずれから入射しても、全光線拡散透過率は約 91%、全光線拡散反射率は約 26% と差はみられなかった。一方、試料 6-1、6-2 および 6-4 の光散乱性は、光の入射方向がフィルム側からとフィラー側からとで差が認められた。光がフィルム側から入射する場合には、全光線拡散透過率が試料 6-3 より低い、全光線拡散反射率は高く、また、光がフィラー側から入射する場合には、全光線拡散透過率がきわめて高く、逆に全光線拡散反射率は低かった。

また、高温高湿下に放置後、試料 6-1 ~ 6-3 の光散乱性には、ほとんど変化が見られなかったが、結着層の粘着剤を硬化させていない試料 6-4 については、光がフィルム側から入射する場合の全光線拡散透過率が上昇し、一方、全光線拡散反射率が低下した。すなわち、本発明のフィラーレンズは、光の入射方向が表裏いずれであるかによって光散乱性が異なるレンズ効果が認められ、かつ高温高湿下においても特定の光散乱性を保持し続けるフィラーレンズを得ることが可能である。また、試料 6-4 のフィラーレンズは、フィラーの埋め込み前の乾燥およびエージング時に部分的に硬化反応が進んでしまうことにより、均一なフィラー層が形成されず、光学特性に劣るものであった。

## 7. フィラーレンズの適用例

例えば、本発明のフィラーレンズを透過型の液晶ディスプレイに用いる場合には、図 38 (a) に示すように、両面に偏光板 20 が設けられた液晶セル 21 と



バックライトユニット 22 との間に、フィラーレンズ L を液晶セル 21 側に向けて挿入したり、または、図 38 (b) のようにフィルム 1 面に粘着加工を施して粘着層 23 を設け、フィラーレンズ L と偏向板 20 とを貼り合わせて用いると、バックライトユニット 22 の光の透過率がきわめて高く、これに加えてディスプレイの前面側 (図で上側) から入射する太陽光や電灯光は反射しやすい状態となる。したがって、液晶セル 21 を照明する光量がきわめて多くなり、液晶画像の鮮明化ならびに節電効果を得ることができる。さらに、本発明のフィラーレンズ L は、光拡散性に優れているので、バックライトユニット 22 による背景色をペーパーホワイト色に近づけることができ、液晶ディスプレイのコントラストを向上させることができる。

また、本発明のフィラーレンズを反射型の液晶ディスプレイに用いる場合には、図 39 (a) に示すように、両面に偏光板 20 が設けられた液晶セル 21 と反射板 24 との間に本発明のフィラーレンズ L を挿入したり、または、図 39 (b) に示すように、2 枚のフィラーレンズ L のフィルム 1 どうしを粘着層 23 を介して貼り合せ、光拡散体として用いることもできる。この場合、1 枚のフィラーレンズ L の代わりに他の光拡散体と貼り合わせて用いることもできる。さらに、図 39 (c) に示すように、フィラーレンズ L のフィルム 1 にアルミ蒸着層 25 を形成して、拡散反射板として使用することも可能である。これにより、本発明のフィラーレンズは、効率よく光を取り入れ、かつ、効率良く光を拡散させることが可能である。

さらに、図 40 に示すように、液晶セル 21 の前面側にフィルム 1 を前方に向けてフィラーレンズ L を配置すると、バックライトユニット 22 の透過率が高いことから、視野角がきわめて広い光拡散レンズとして使用することもできる。

以上説明したように、本発明のフィラーレンズによれば、基体上に積層された結着層の表層に、当該結着層の表面から一部が突出する状態で、単層のフィラー層が形成され、該フィラー層の平面方向のフィラーの充填密度が高く均一であるため、光拡散性が基体側からとフィラー層側からとでは異なったり、フィラーのレンズ効果が増大したりし、その結果、多様な目的に応じたレンズ効果を提供す

ることができる。したがって、本発明のフィラーレンズをLCD、EL、FED等のディスプレイに用いると入射光の減衰が少ないため、広視野角、高輝度、高コントラストを兼ね備えた液晶ディスプレイの設計が可能となり、工業的に極めて優れた作用効果を奏する。

## 請 求 の 範 囲

1. 基体と、この基体上に、直接または他の層を介して積層された結着層と、この結着層の表層に、当該結着層の表面から一部が突出する状態で埋め込まれた多数のフィラーからなるフィラー層とを備えることを特徴とするフィラーレンズ。
2. 前記フィラー層は、フィラーが、面方向で高密度に、かつ単層で埋め込まれ形成されたものであることを特徴とする請求項1に記載のフィラーレンズ。
3. 前記フィラーは、真円度が80%以上の球であることを特徴とする請求項2に記載のフィラーレンズ。
4. 前記フィラーが、前記結着層に、その直径の10～90%埋め込まれていることを特徴とする請求項2または3に記載のフィラーレンズ。
5. 基体が透明基体であることを特徴とする請求項1～4のいずれかに記載のフィラーレンズ。
6. 前記フィラーの屈折率が1.45～1.55であることを特徴とする請求項2～5のいずれかに記載のフィラーレンズ。
7. 前記基体、結着層およびフィラーの各々の屈折率の差が0.30以下であることを特徴とする請求項6に記載のフィラーレンズ。
8. 前記フィラー層は、体積平均粒子径が2～15  $\mu\text{m}$ の有機フィラーからなることを特徴とする請求項1に記載のフィラーレンズ。

9. 前記有機フィラーの粒子径分布が0.8～1.0であることを特徴とする請求項8に記載のフィラーレンズ。

10. 前記有機フィラーは球形であり、その真円度が85%以上であることを特徴とする請求項8または9に記載のフィラーレンズ。

11. 前記有機フィラーの屈折率が1.42～1.55であることを特徴とする請求項8～10のいずれかに記載のフィラーレンズ。

12. 前記有機フィラーが、アクリル樹脂またはシリコン樹脂であることを特徴とする請求項8～11のいずれかに記載のフィラーレンズ。

13. 基体が、全光線透過率80%以上の透明基体であることを特徴とする請求項8～12のいずれかに記載のフィラーレンズ。

14. 前記フィラー層の面方向におけるフィラーの粒子間距離の標準偏差が0.4以下であることを特徴とする請求項1に記載のフィラーレンズ。

15. 前記フィラーは、粒子径分布が0.8～1.0であることを特徴とする請求項14に記載のフィラーレンズ。

16. 前記フィラーは、体積平均粒子径が2～15 $\mu\text{m}$ であることを特徴とする請求項14または15に記載のフィラーレンズ。

17. 前記フィラーは球形であり、その真円度が85%以上であることを特徴とする請求項14～16のいずれかに記載のフィラーレンズ。

18. 前記フィラーは、屈折率が1.42～1.55であることを特徴とする請求項14～17のいずれかに記載のフィラーレンズ。

19. 前記基体は、全光線透過率80%以上の透明基体であることを特徴とする請求項14～18のいずれかに記載のフィラーレンズ。

20. 前記結着層のゲル分率が60%以上であり、前記フィラーの突出の割合が50%以上であることを特徴とする請求項1に記載のフィラーレンズ。

21. 前記フィラーは、有機フィラーであることを特徴とする請求項20に記載のフィラーレンズ。

22. 前記フィラーの体積平均粒子径が2～15  $\mu\text{m}$ であることを特徴とする請求項20または21に記載のフィラーレンズ。

23. 前記フィラーは、粒子径分布が0.8～1.0であることを特徴とする請求項20～22のいずれかに記載のフィラーレンズ。

24. 前記フィラーは、真円度が80%以上の球であることを特徴とする請求項20～23のいずれかに記載のフィラーレンズ。

25. 前記フィラーの屈折率が1.42～1.55であることを特徴とする請求項20～24のいずれかに記載のフィラーレンズ。

26. 前記基体は、全光線透過率が85%以上の透明基体であることを特徴とする請求項20～25のいずれかに記載のフィラーレンズ。

27. 前記フィラーの周縁部に、結着層の盛り上がり部分を設けたことを特徴とする請求項1に記載のフィラーレンズ。

28. 前記フィラー層は、フィラーが単層で埋め込まれ形成されたものであることを特徴とする請求項27に記載のフィラーレンズ。

29. 前記フィラーは、有機フィラーであることを特徴とする請求項28に記載のフィラーレンズ

30. 前記フィラーの個数平均粒子径が2～10  $\mu\text{m}$ であることを特徴とする請求項28または29に記載のフィラーレンズ。

31. 前記フィラーは、粒子径分布が0.8～1.0であることを特徴とする請求項28～30のいずれかに記載のフィラーレンズ。

32. 前記フィラーは、真円度が80%以上の球であることを特徴とする請求項28～31のいずれかに記載のフィラーレンズ。

33. 前記フィラーは、前記結着層に、その直径の30～90%埋め込まれていることを特徴とする請求項28～32のいずれかに記載のフィラーレンズ。

34. 基体の全光線透過率が85%以上の透明基体であることを特徴とする請求項27～33のいずれかに記載のフィラーレンズ。

35. 前記フィラーの屈折率が1.42～1.55であることを特徴とする請求項28～34のいずれかに記載のフィラーレンズ。

36. 前記結着層は、硬化制限された硬化剤により硬化されていることを特徴とする請求項1に記載のフィラーレンズ。

37. 前記硬化制限された硬化剤は、ブロック化された硬化剤またはカプセル化された硬化剤であることを特徴とする請求項36に記載のフィラーレンズ。

38. 前記硬化制限された硬化剤は、ブロックイソシアネート化合物であることを特徴とする請求項36または37に記載のフィラーレンズ。

39. 前記フィラーは、面方向で高密度に、かつ単層で埋め込まれることを特徴とする請求項36～38のいずれかに記載のフィラーレンズ。

40. 前記フィラーは、前記結着層に、その直径の10～90%埋め込まれることを特徴とする請求項36～39のいずれかに記載のフィラーレンズ。

41. 前記請求項1～40のいずれかに記載のフィラーレンズを製造する方法であって、基体上に、直接または他の層を介して結着層を積層する工程と、フィラーを加圧媒体によって結着層に埋め込む工程と、前記工程で得た積層体に付着した余剰フィラーを除去する工程とを具備することを特徴とするフィラーレンズの製造方法。

42. 前記請求項20～26のいずれかに記載のフィラーレンズを製造する方法であって、前記基体上に直接または他の層を介して結着層を積層する工程の後に、前記結着層を硬化させゲル分率を60%以上にする工程を有し、前記フィラーを加圧媒体によって結着層に埋め込む工程では、フィラーの突出の割合が50%以上となるように埋め込むことを特徴とする請求項41に記載のフィラーレンズの製造方法。

43. 前記請求項27～35のいずれかに記載のフィラーレンズを製造する方法であって、前記余剰フィラーを除去する工程の後に、前記工程で得た積層体において結着層を軟化させる工程を有することを特徴とする請求項41に記載のフィラーレンズの製造方法。

44. 前記請求項36～40のいずれかに記載のフィラーレンズを製造する方法であって、前記フィラーを加圧媒体によって結着層に埋め込む工程の後に、前記結着層を硬化する工程を有することを特徴とする請求項41に記載のフィラーレンズの製造方法。

45. 前記フィラーを加圧媒体によって結着層に埋め込む工程の前に、フィラーを結着層の表面に付着させる工程を有することを特徴とする請求項41～44のいずれかに記載のフィラーレンズの製造方法。

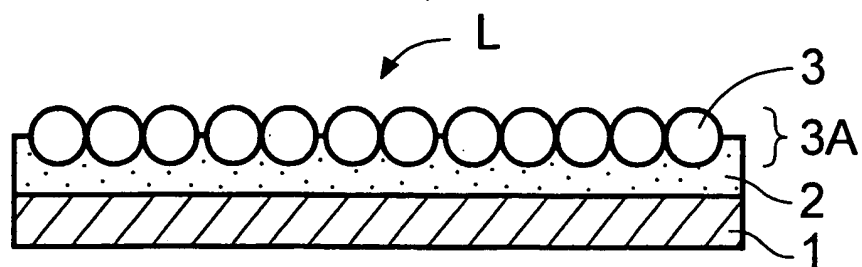
46. 前記加圧媒体は粒状物であり、この加圧媒体を振動させて前記フィラーを打撃することにより、当該フィラーを前記結着層に埋め込むことを特徴とする請求項41～45のいずれかに記載のフィラーレンズの製造方法。

47. 前記粒状物は、直径が2mm以下であることを特徴とする請求項46に記載のフィラーレンズの製造方法。

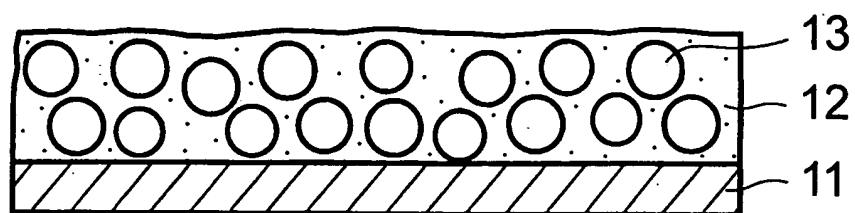
48. 余剰フィラーを除去する工程において、水または水溶液を用いて除去することを特徴とする請求項41～47のいずれかに記載のフィラーレンズの製造方法。



第1図



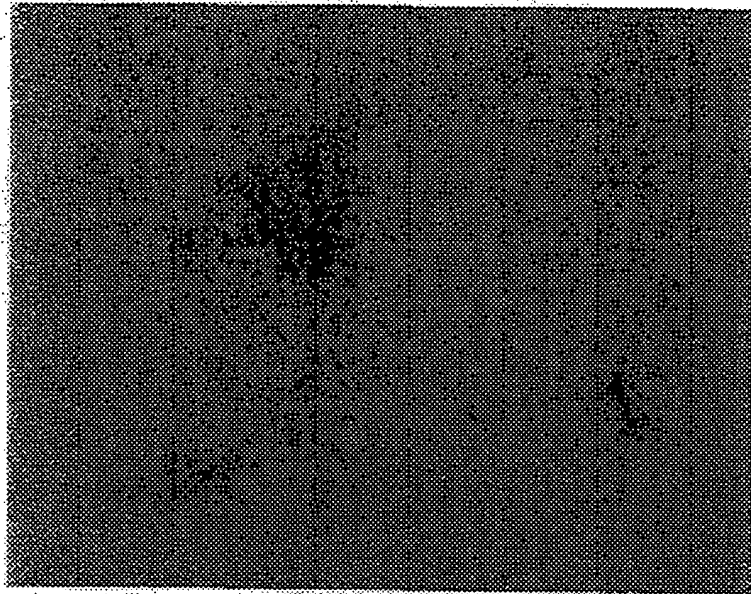
第2図



## 第3図

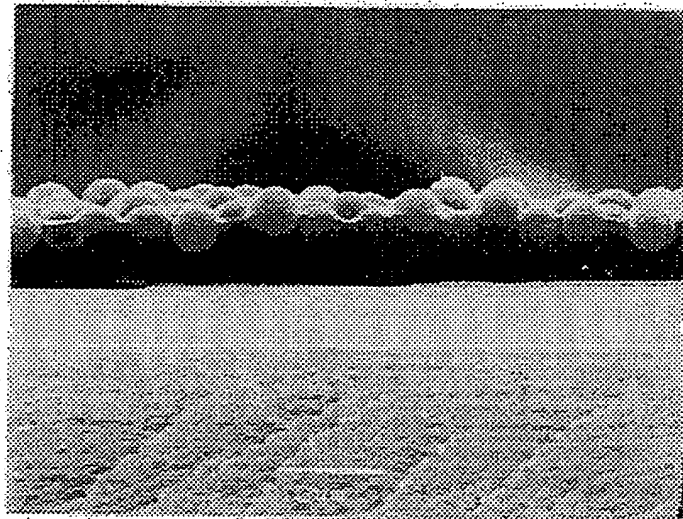
図面代用写真

(a)



加圧ローラーを用いて製造したフィラーレンズの平面を  
10倍の対物レンズで撮影した光学顕微鏡写真

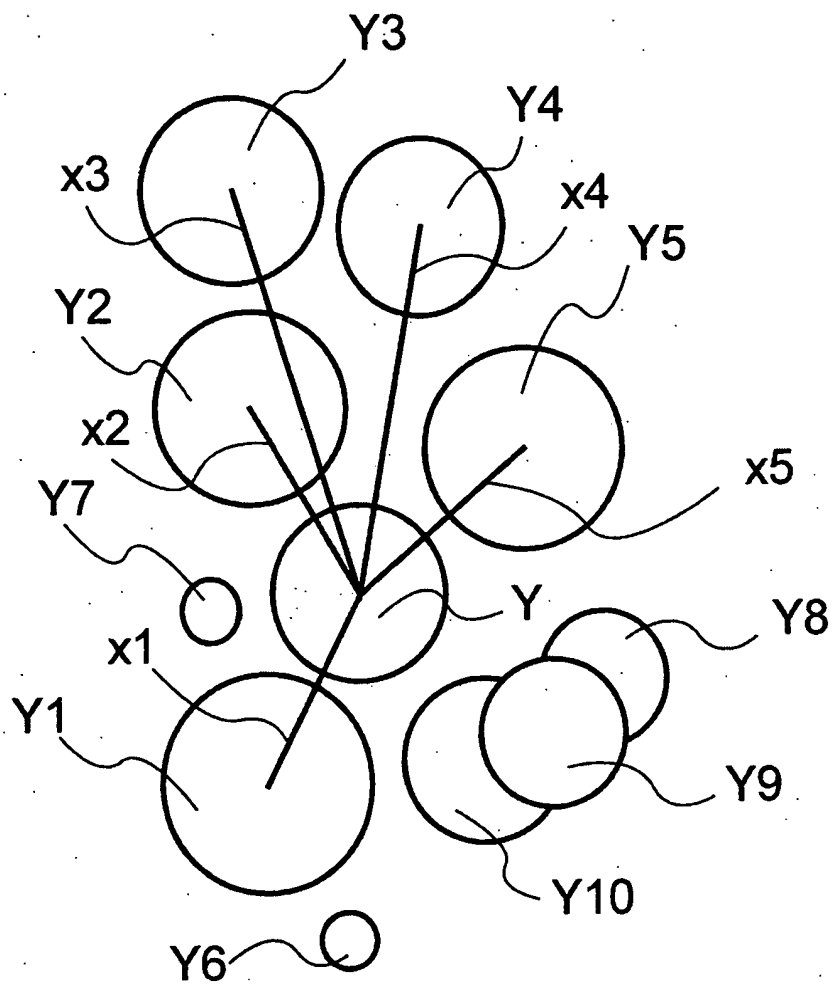
(b)



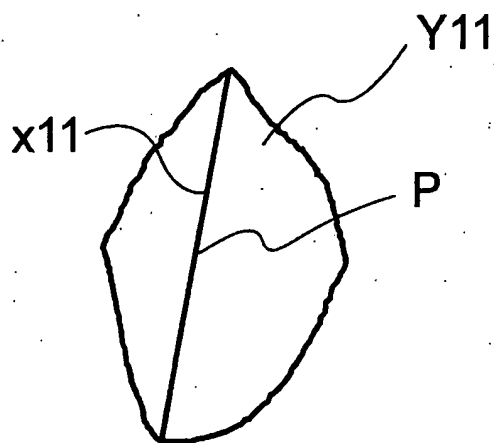
加圧ローラーを用いて製造したフィラーレンズの断面を  
2000倍の倍率で撮影した電子顕微鏡写真

## 第4図

(a)

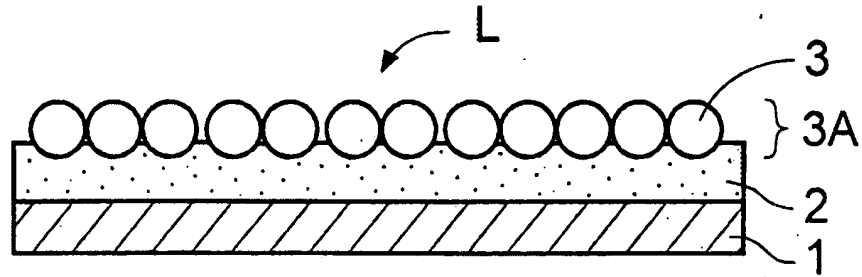


(b)

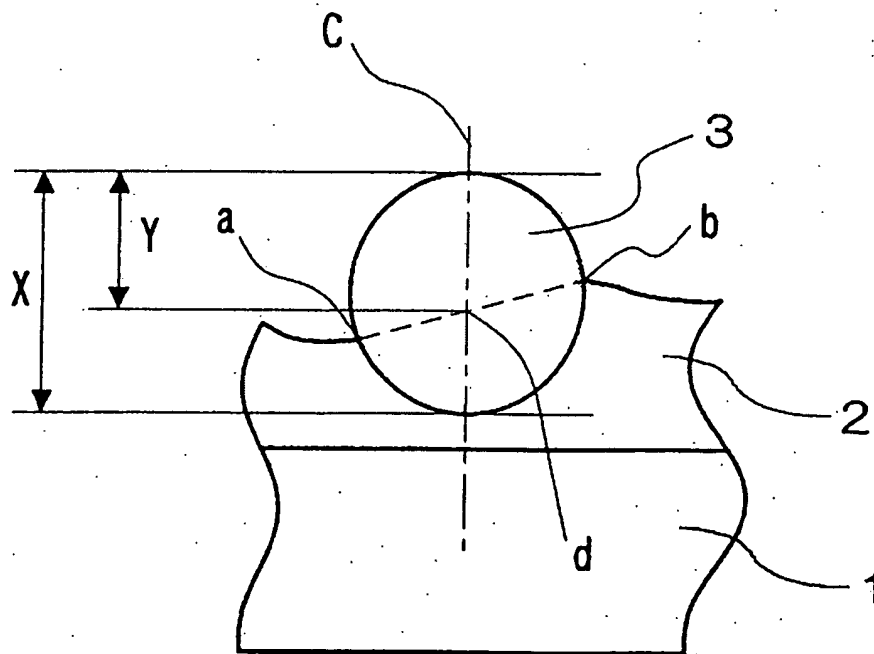


## 第5図

(a)

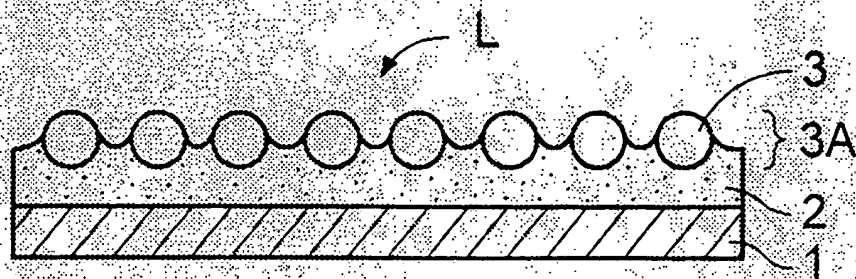


(b)

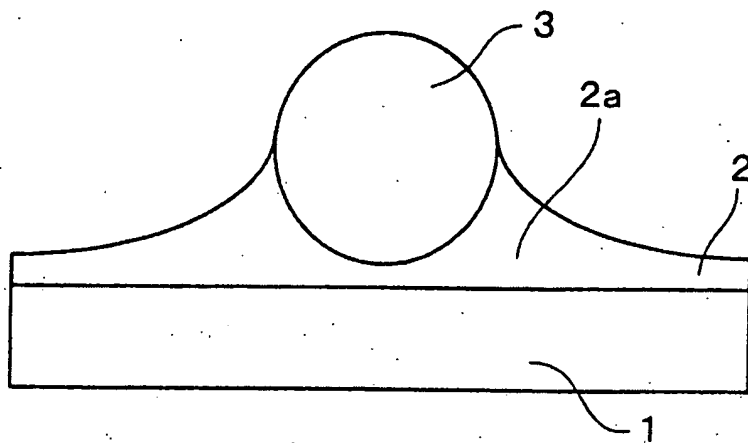


## 第6図

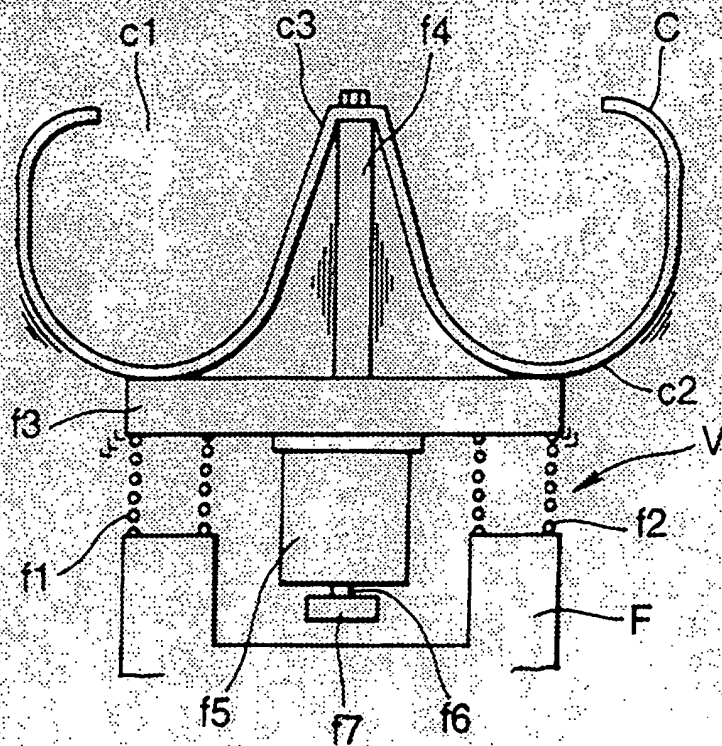
(a)



(b)



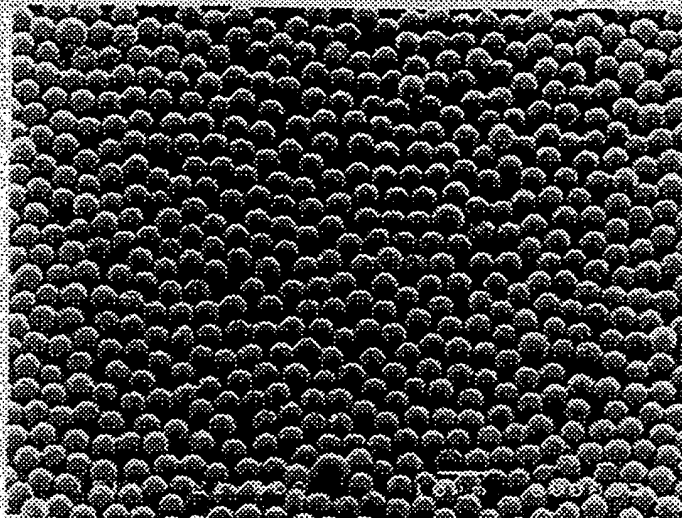
## 第7図



## 第8図

図面代用写真

(a)



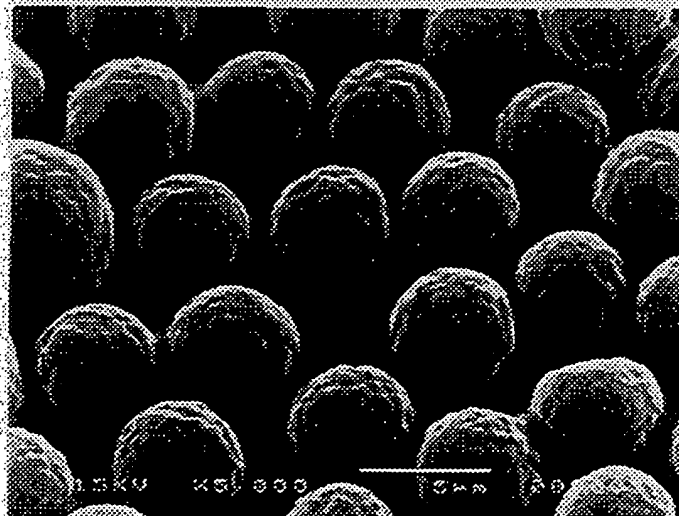
試料1-1のフィラーレンズの平面写真(1000倍)

(b)



試料1-1のフィラーレンズの平面写真(2000倍)

(c)

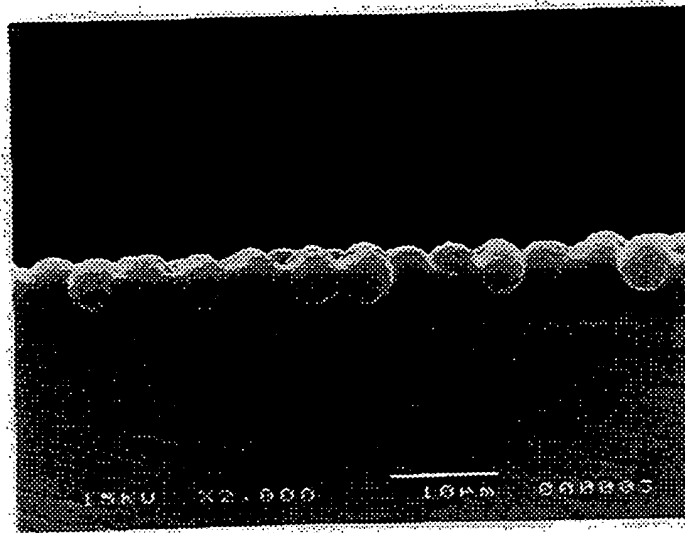


試料1-1のフィラーレンズの平面写真(5000倍)

## 第9図

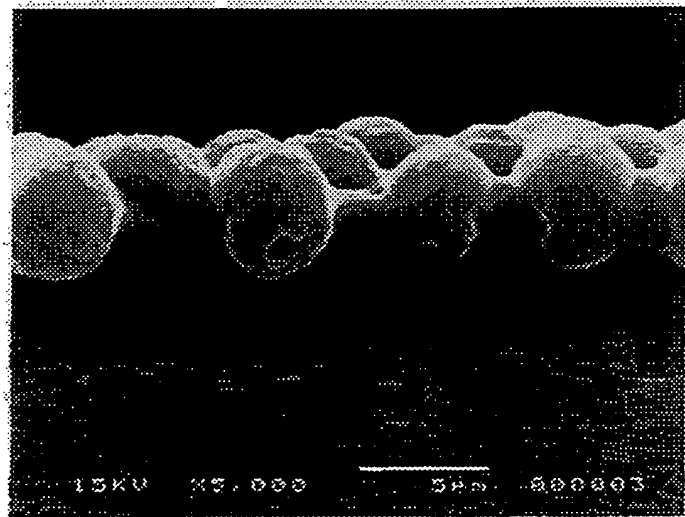
図面代用写真

(a)



試料1-1のフィラーレンズの断面写真(2000倍)

(b)



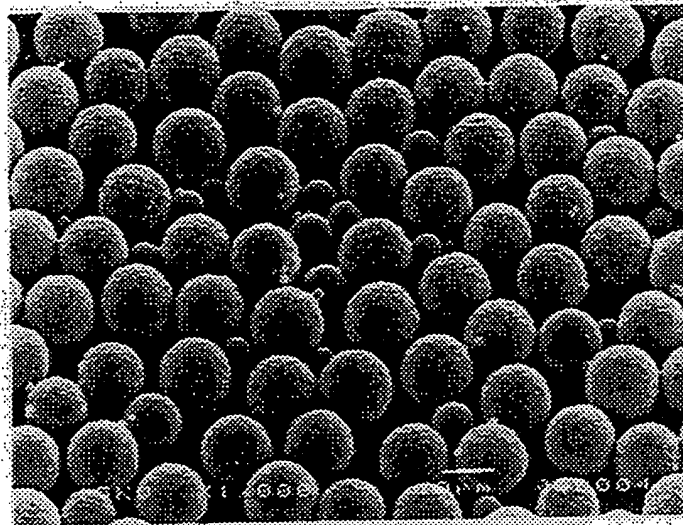
試料1-1のフィラーレンズの断面写真(5000倍)



## 第 1 0 図

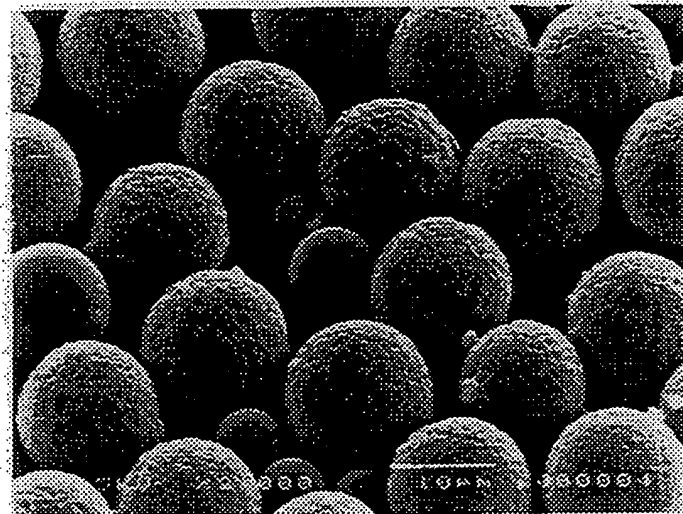
図面代用写真

(a)



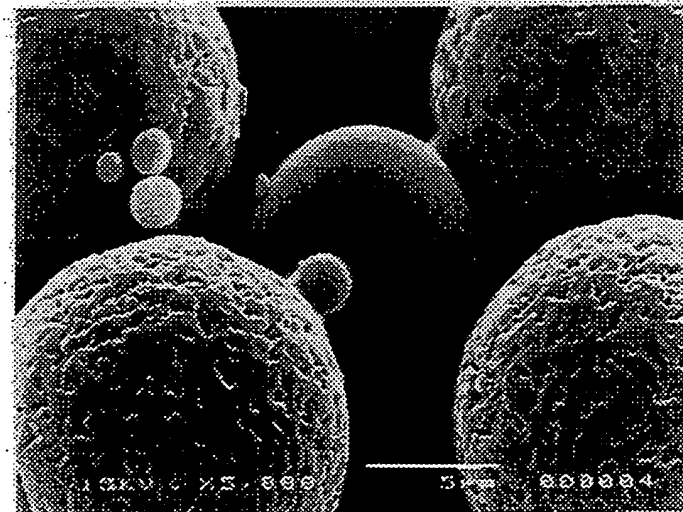
試料 1 - 2 のフィラーレンズの平面写真 (1 0 0 0 倍)

(b)



試料 1 - 2 のフィラーレンズの平面写真 (2 0 0 0 倍)

(c)

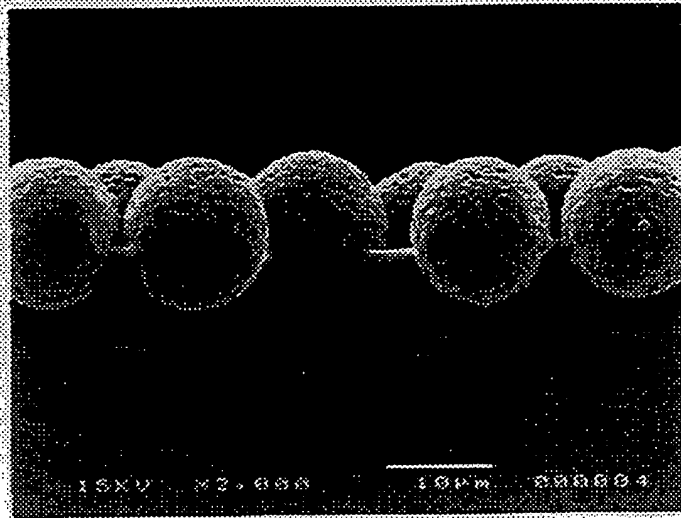


試料 1 - 2 のフィラーレンズの平面写真 (5 0 0 0 倍)

## 第 1 1 図

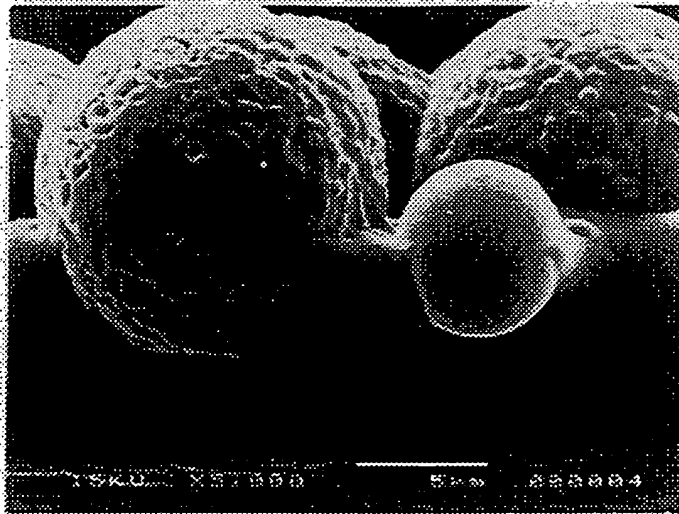
図面代用写真

(a)



試料 1 - 2 のフィラーレンズの断面写真 (2 0 0 0 倍)

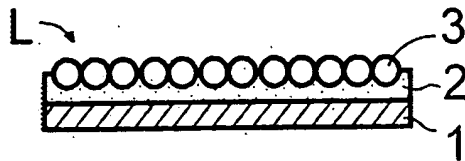
(b)



試料 1 - 2 のフィラーレンズの断面写真 (5 0 0 0 倍)

## 第 1 2 図

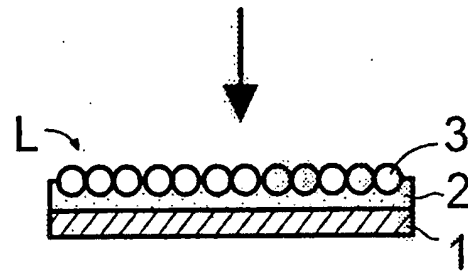
(a)



フィルム側からの入射光

(b)

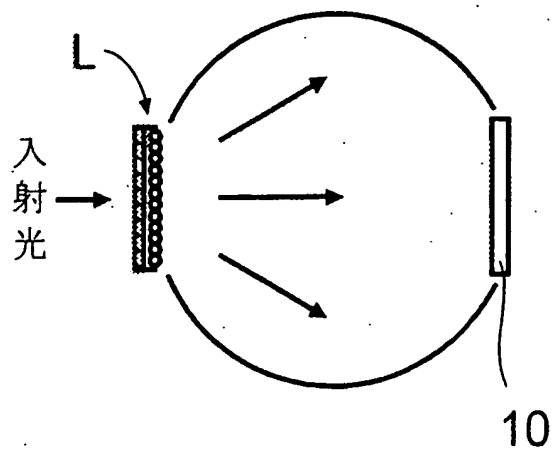
フィラー側からの入射光



## 第 1 3 図

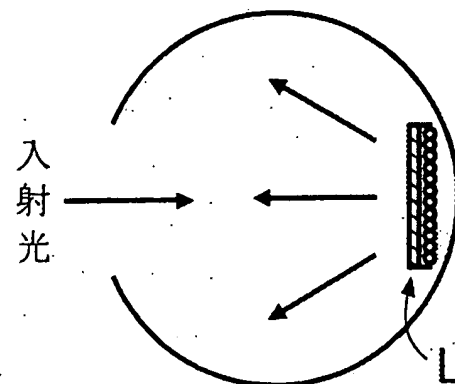
(a)

全光線拡散透過率



(b)

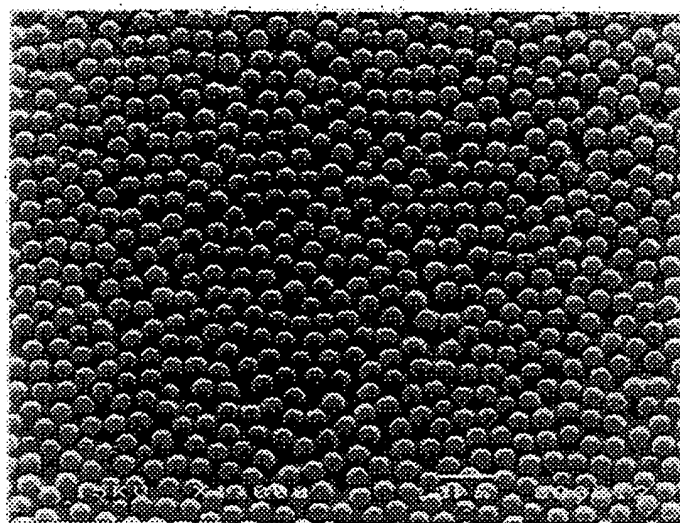
全光線拡散反射率



## 第 1 4 図

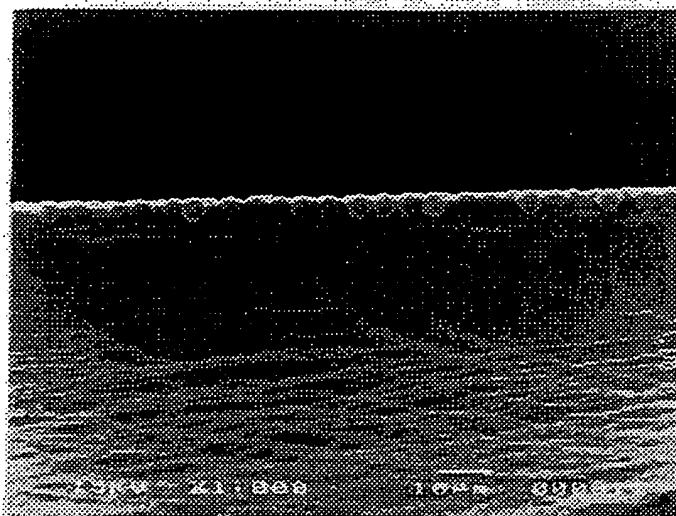
図面代用写真

(a)



試料 2-1 のフィラーレンズの平面写真 (1000倍)

(b)

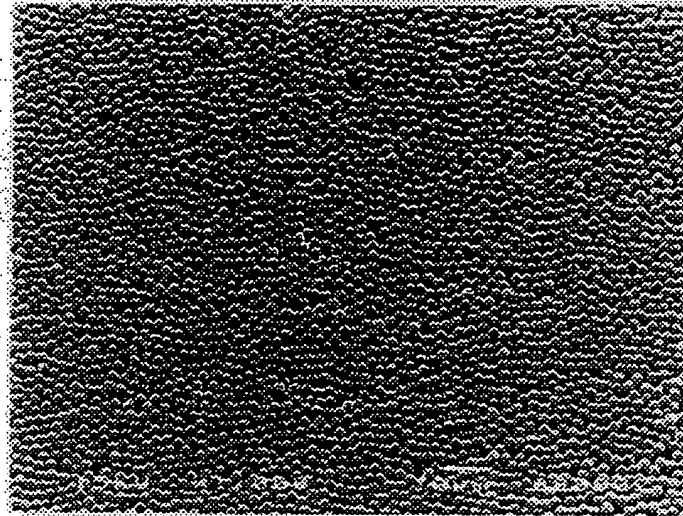


試料 2-1 のフィラーレンズの断面写真 (1000倍)

## 第 1 5 図

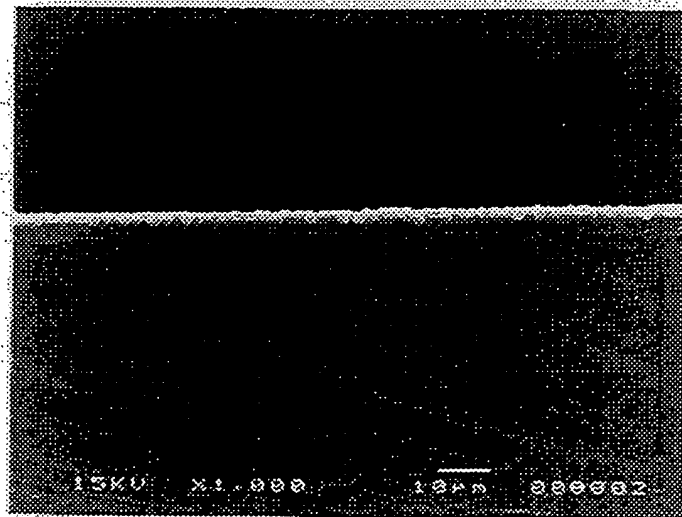
図面代用写真

(a)



試料 2-2 のフィラーレンズの平面写真 (1000倍)

(b)

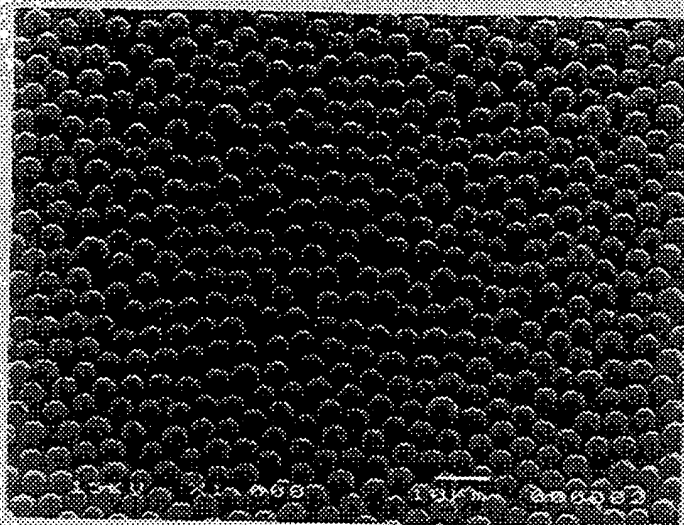


試料 2-2 のフィラーレンズの断面写真 (1000倍)

## 第 1 6 図

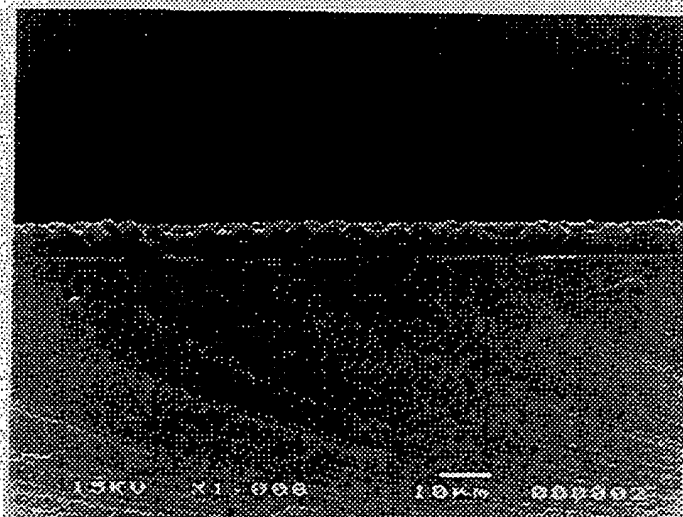
図面代用写真

(a)



試料 2-3 のフィラーレンズの平面写真 (1000倍)

(b)

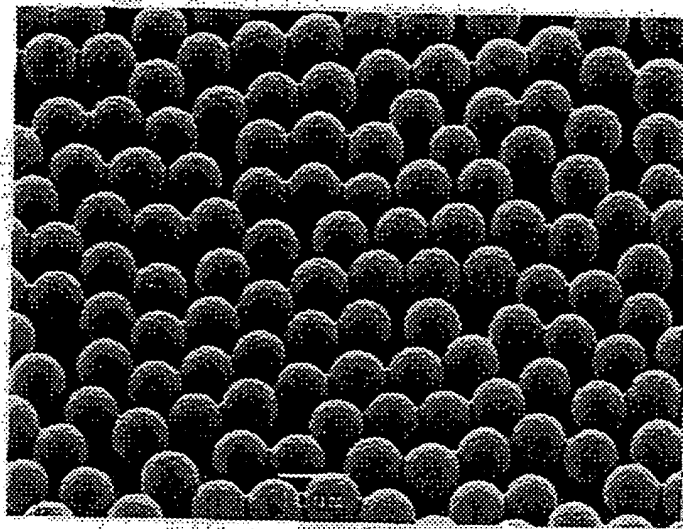


試料 2-3 のフィラーレンズの断面写真 (1000倍)

## 第 1 7 図

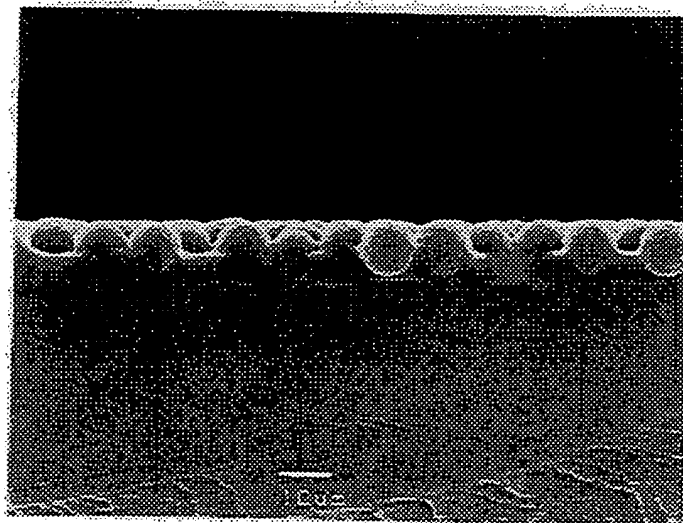
図面代用写真

(a)



試料 2-4 のフィラーレンズの平面写真 (1000倍)

(b)

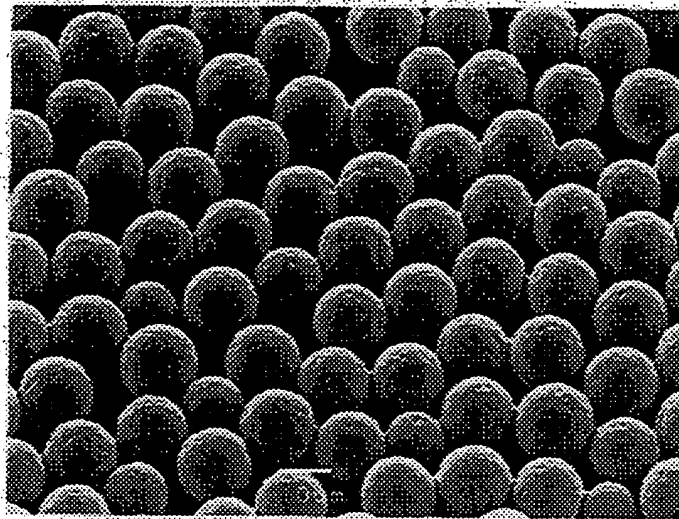


試料 2-4 のフィラーレンズの断面写真 (1000倍)

## 第 1 8 図

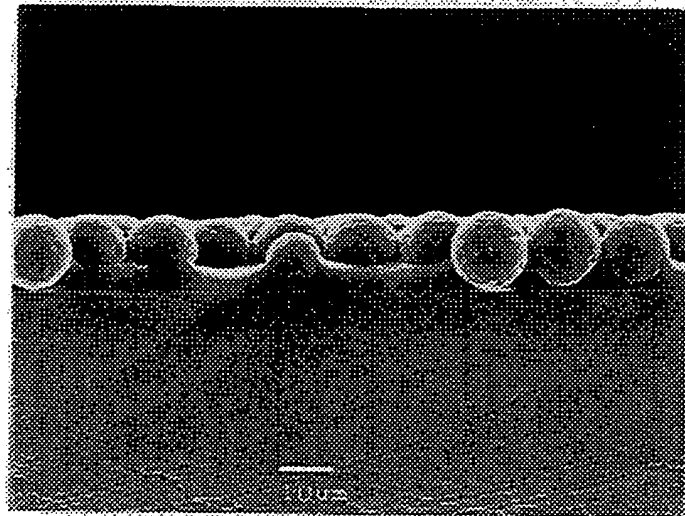
図面代用写真

(a)



試料 2 - 5 のフィラーレンズの平面写真 (1 0 0 0 倍)

(b)



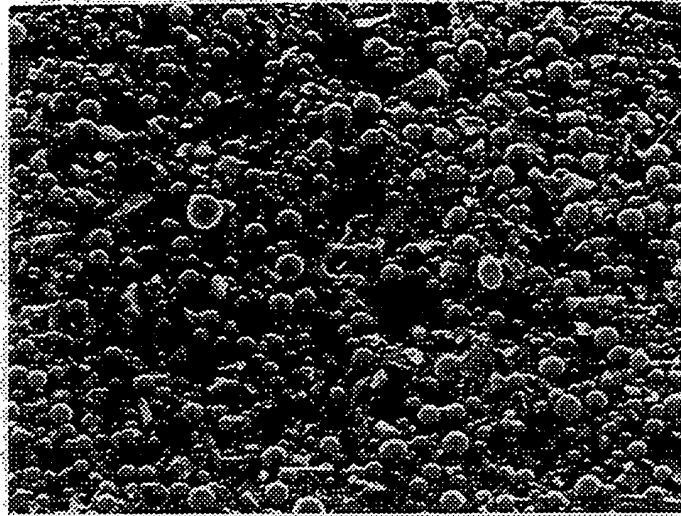
試料 2 - 5 のフィラーレンズの断面写真 (1 0 0 0 倍)



## 第 1 9 図

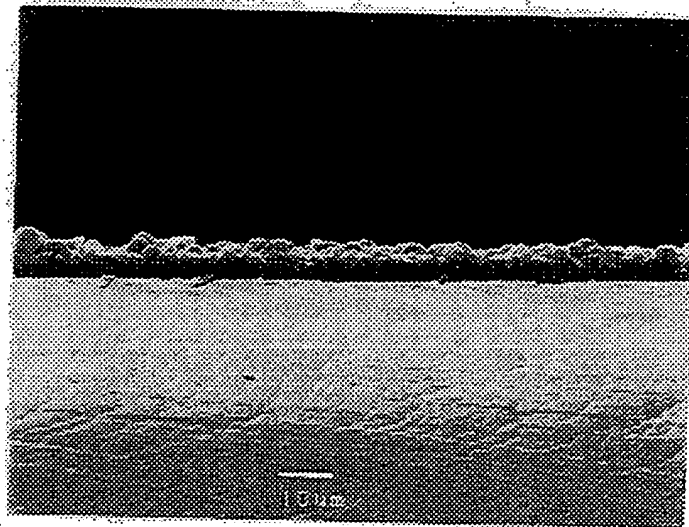
図面代用写真

(a)



試料 2-6 のフィラーレンズの平面写真 (1000倍)

(b)

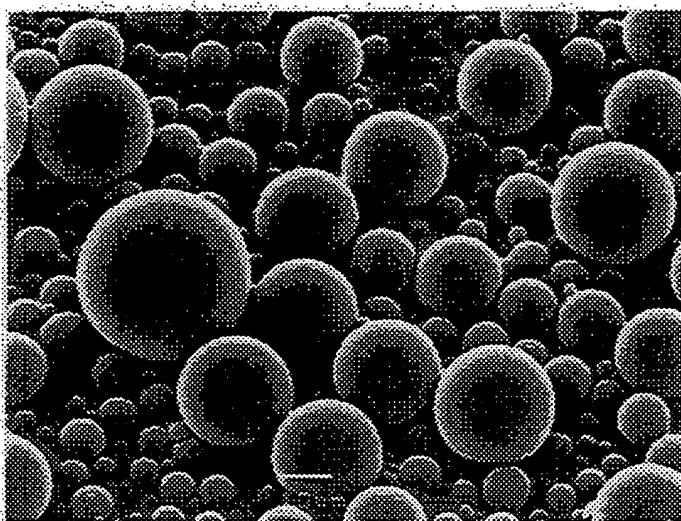


試料 2-6 のフィラーレンズの断面写真 (1000倍)

## 第 2 0 図

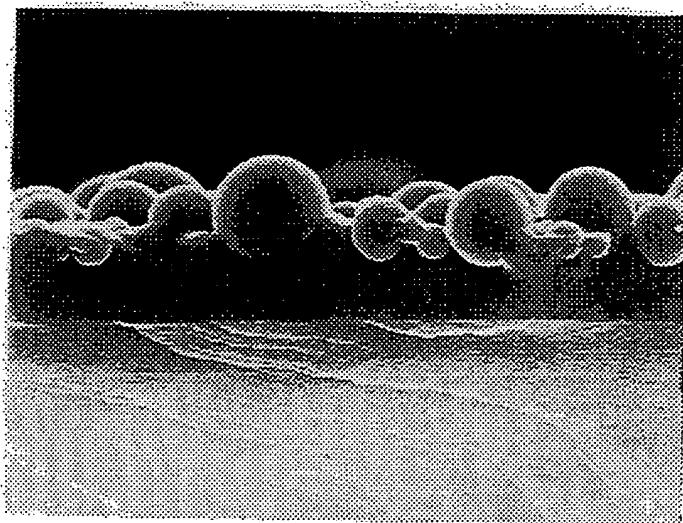
図面代用写真

(a)



試料 2-7 のフィラーレンズの平面写真 (1000倍)

(b)

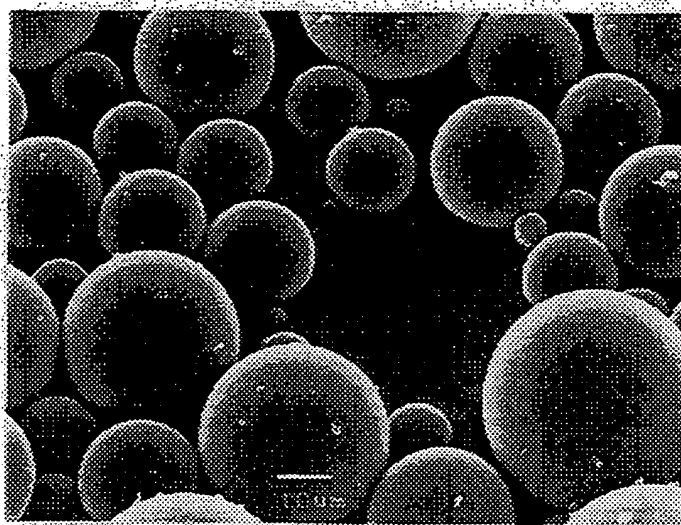


試料 2-7 のフィラーレンズの断面写真 (1000倍)

## 第 2 1 図

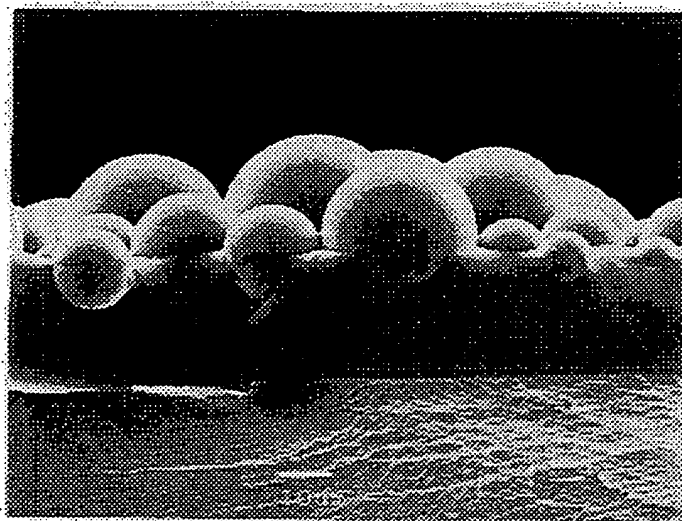
図面代用写真

(a)



試料 2-8 のフィラーレンズの平面写真 (1000倍)

(b)

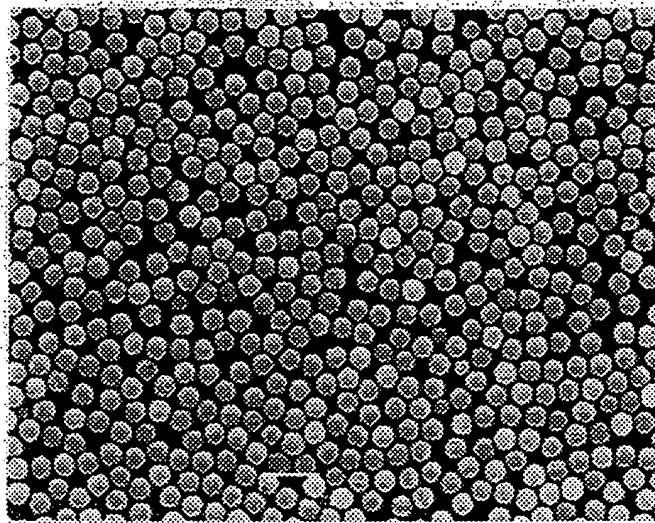


試料 2-8 のフィラーレンズの断面写真 (1000倍)

## 第 2 2 図

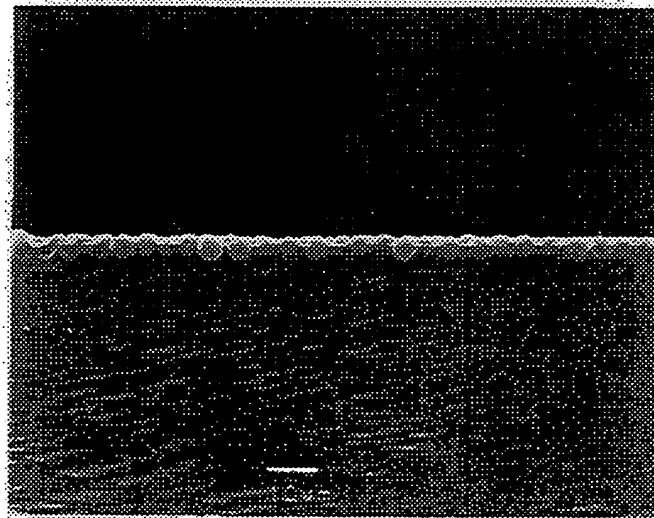
図面代用写真

(a)



試料 3-1 のフィラーレンズの平面写真 (1000倍)

(b)

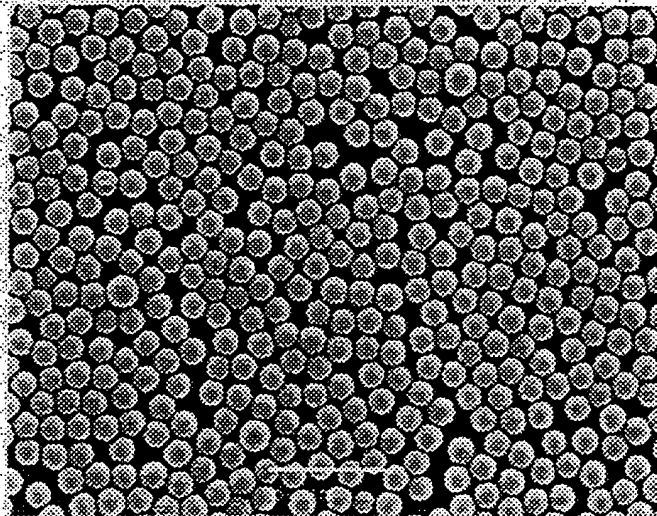


試料 3-1 のフィラーレンズの断面写真 (1000倍)

## 第 2 3 図

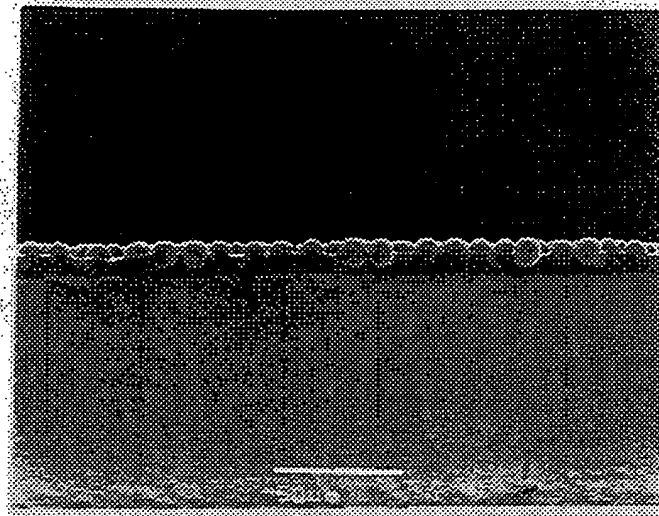
図面代用写真

(a)



試料 3-2 のフィラーレンズの平面写真 (500倍)

(b)

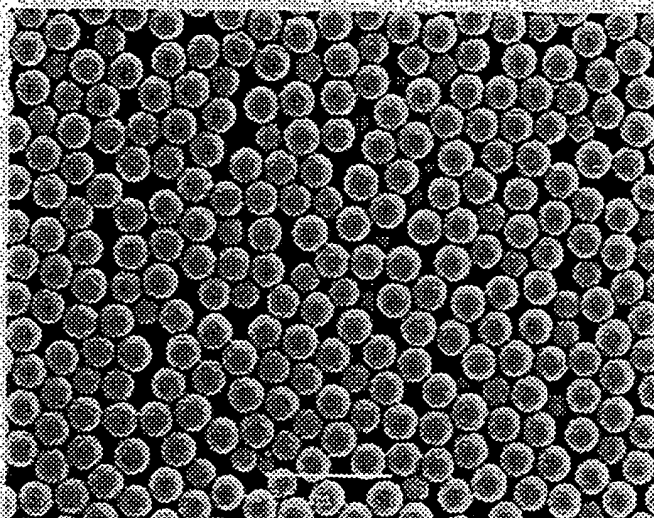


試料 3-2 のフィラーレンズの断面写真 (500倍)

## 第 2 4 図

図面代用写真

(a)



試料 3 - 3 のフィラーレンズの平面写真 (5 0 0 倍)

(b)



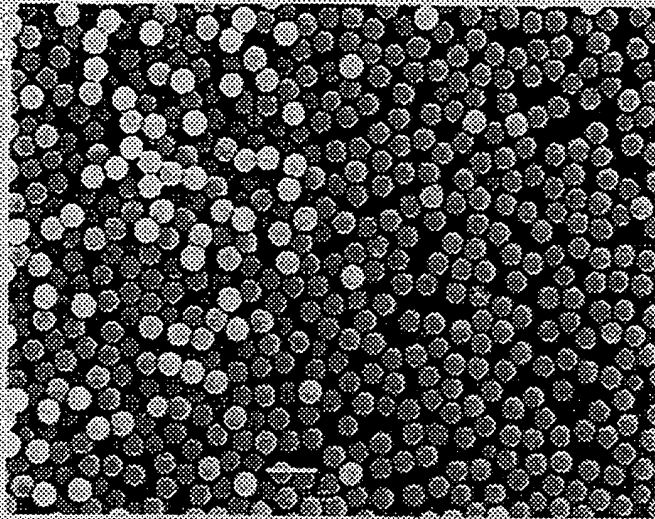
試料 3 - 3 のフィラーレンズの断面写真 (5 0 0 倍)



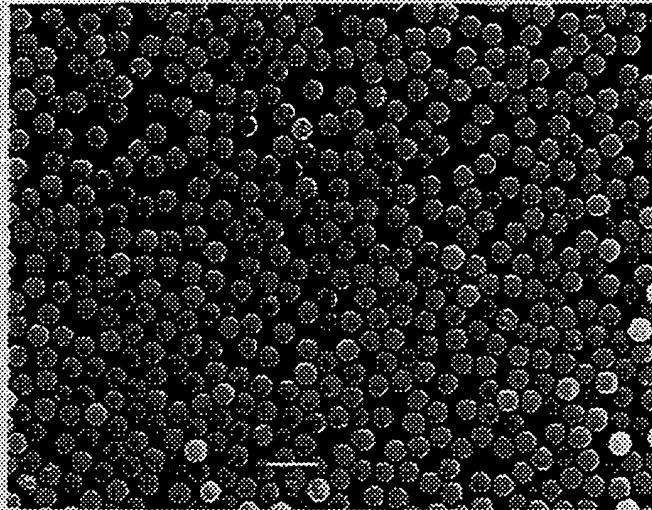
## 第25図

図面代用写真

(a 1)

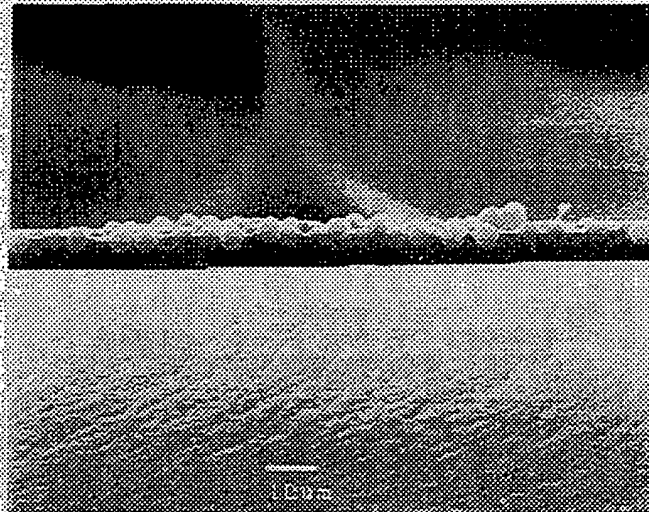


(a 2)



試料3-4のフィラーレンズの平面写真 (1000倍)

(b)



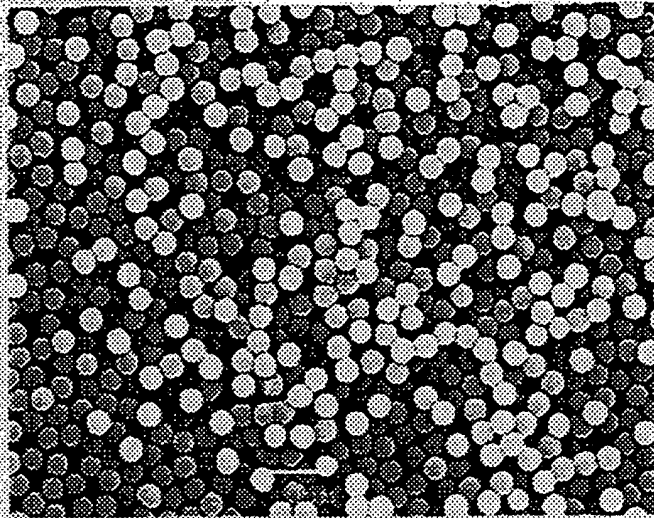
試料3-4のフィラーレンズの断面写真 (1000倍)

23 / 37

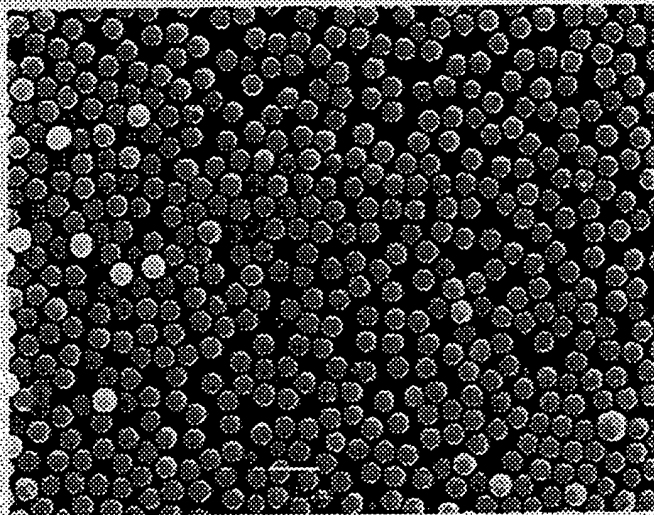
## 第 2 6 図

図面代用写真

(a 1)

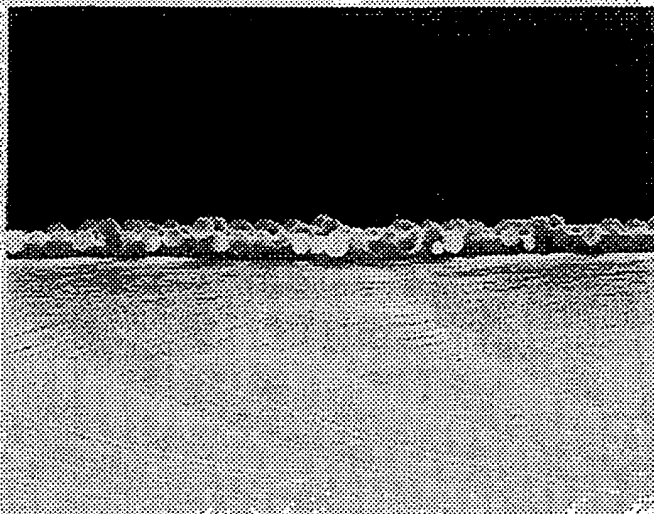


(a 2)



試料 3-5 のフィラーレンズの平面写真 (1000倍)

(b)

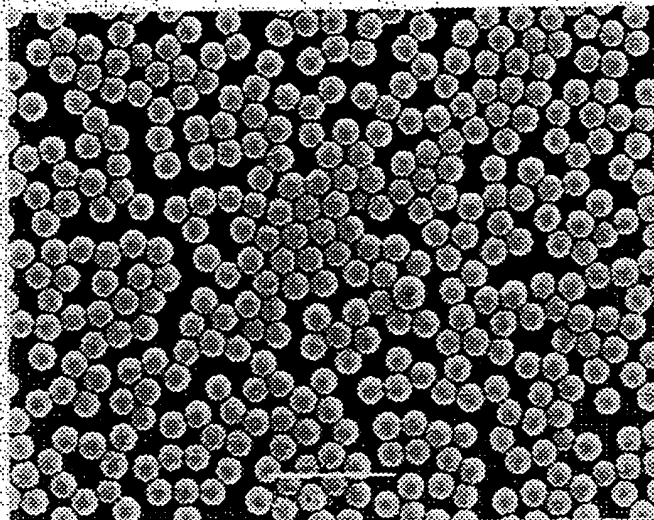


試料 3-5 のフィラーレンズの断面写真 (1000倍)



## 第 2 7 図

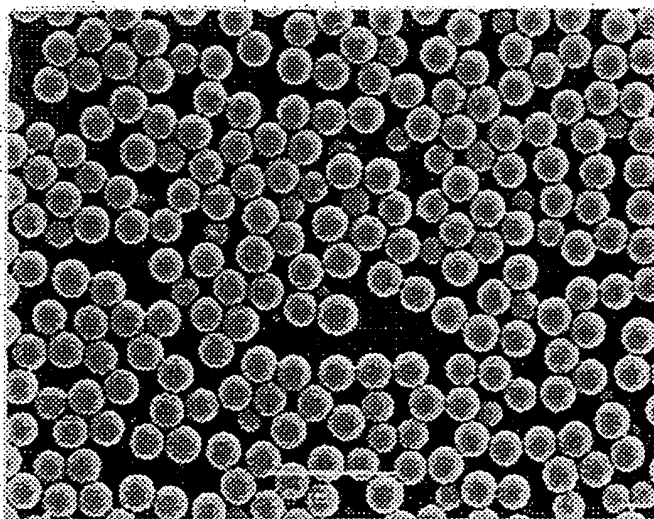
図面代用写真



試料 3 - 6 のフィラーレンズの平面写真 (5 0 0 倍)

## 第 2 8 図

図面代用写真

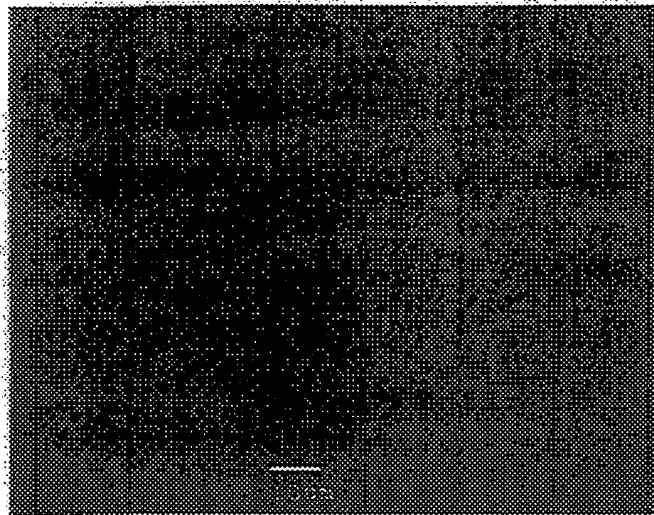


試料 3 - 7 のフィラーレンズの平面写真 (5 0 0 倍)

## 第 2 9 図

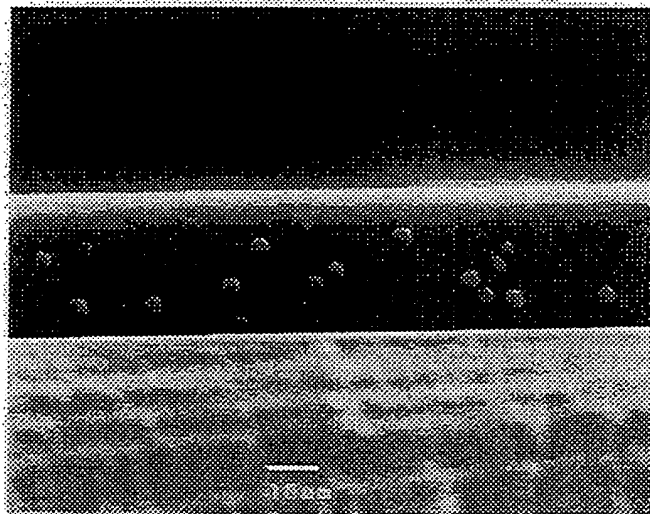
図面代用写真

(a)



試料 3-8 のフィラーレンズの平面写真 (1000倍)

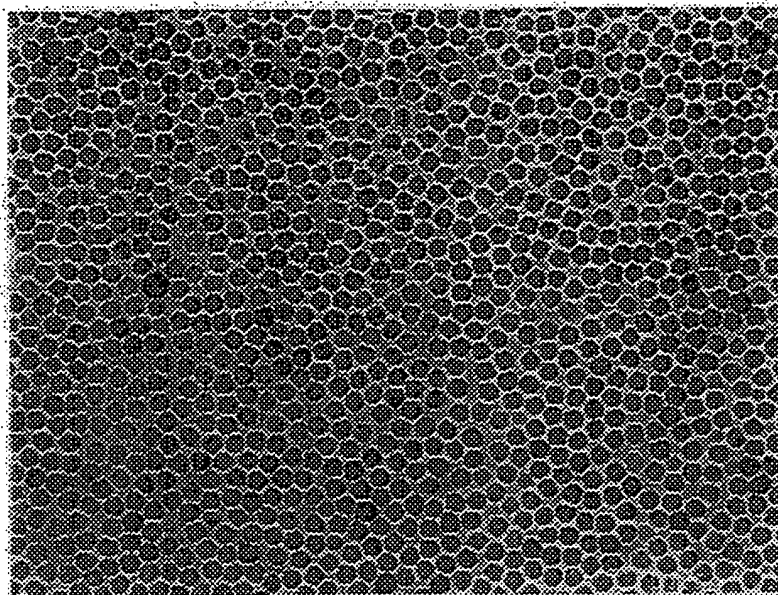
(b)



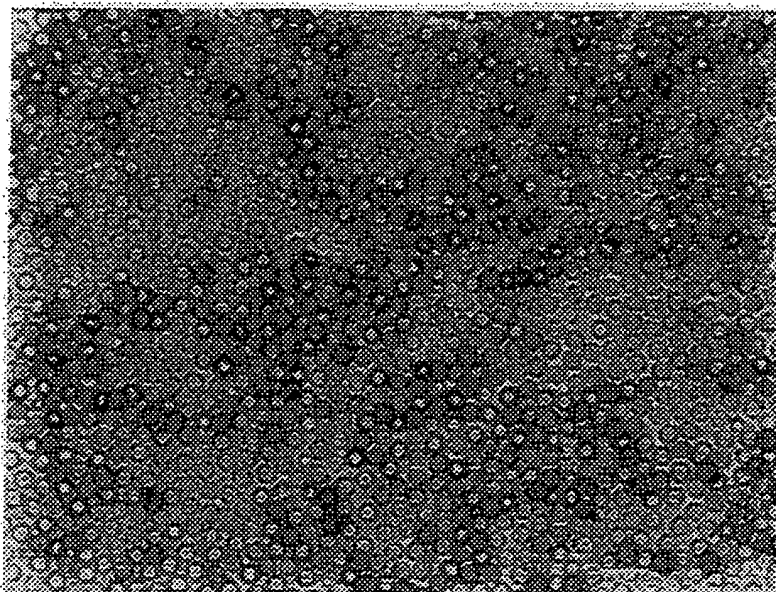
試料 3-8 のフィラーレンズの断面写真 (1000倍)

## 第 3 0 図

図面代用写真



試料 3-1 のフィラーレンズの平面写真  
(50 倍の対物レンズで透過光を用いた光学顕微鏡写真)

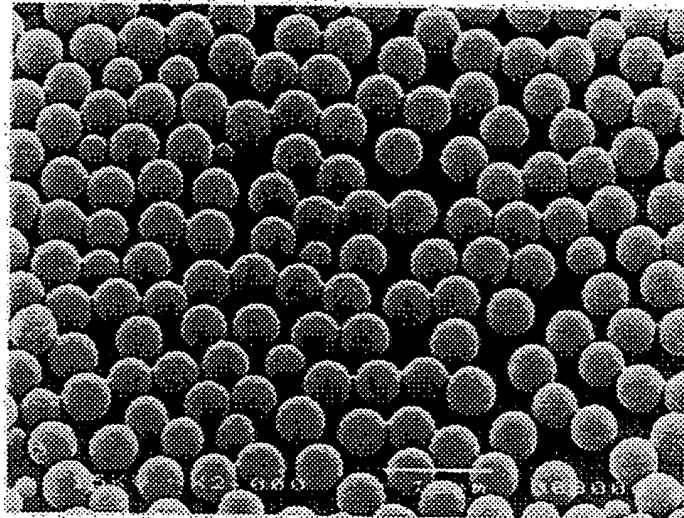


試料 3-4 のフィラーレンズの平面写真  
(50 倍の対物レンズで透過光を用いた光学顕微鏡写真)

## 第 3 1 図

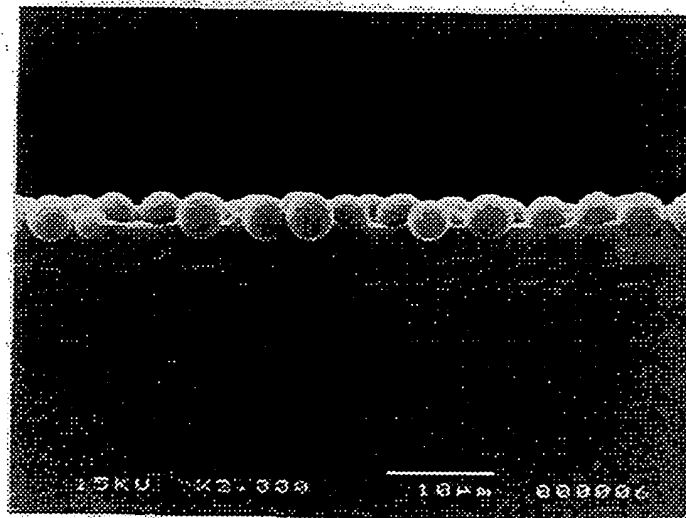
図面代用写真

(a)



試料 4-1 のフィラーレンズの平面写真 (2000倍)

(b)

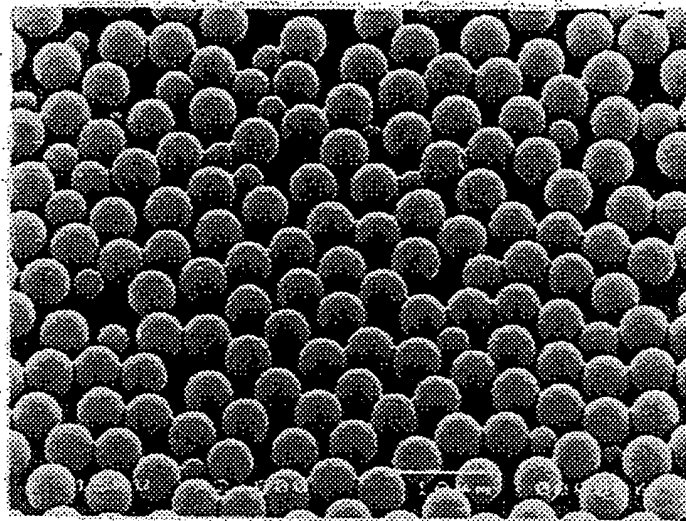


試料 4-1 のフィラーレンズの断面写真 (2000倍)

## 第 3 2 図

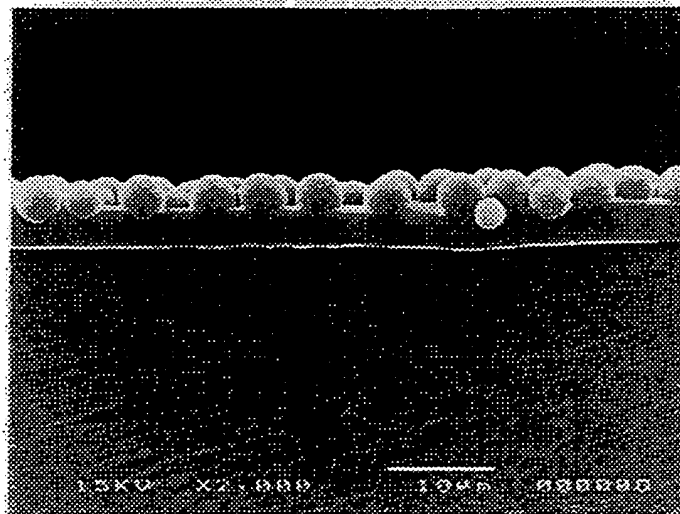
図面代用写真

(a)



試料 4-2 のフィラーレンズの平面写真 (2000倍)

(b)

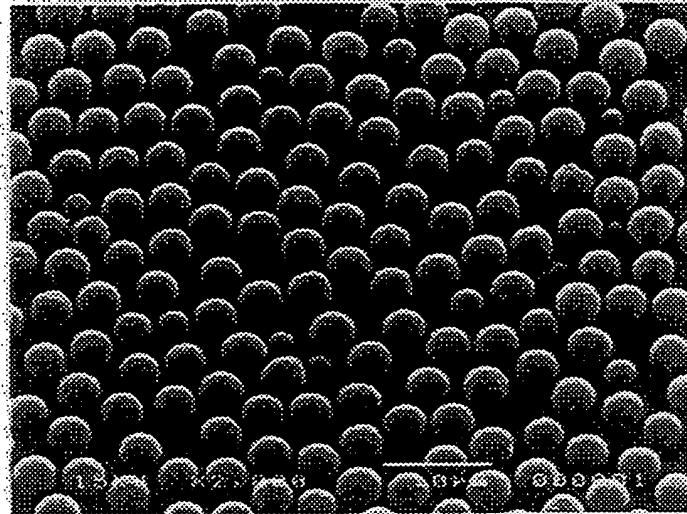


試料 4-2 のフィラーレンズの断面写真 (2000倍)

## 第 3 3 図

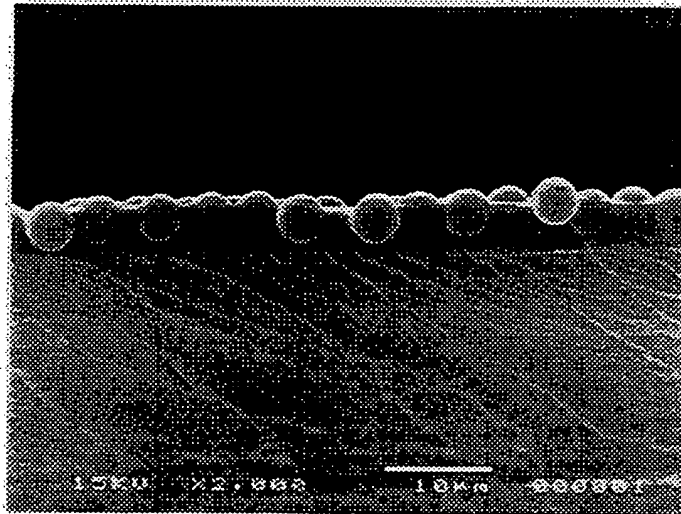
図面代用写真

(a)



試料 4-3 のフィラーレンズの平面写真 (2000倍)

(b)

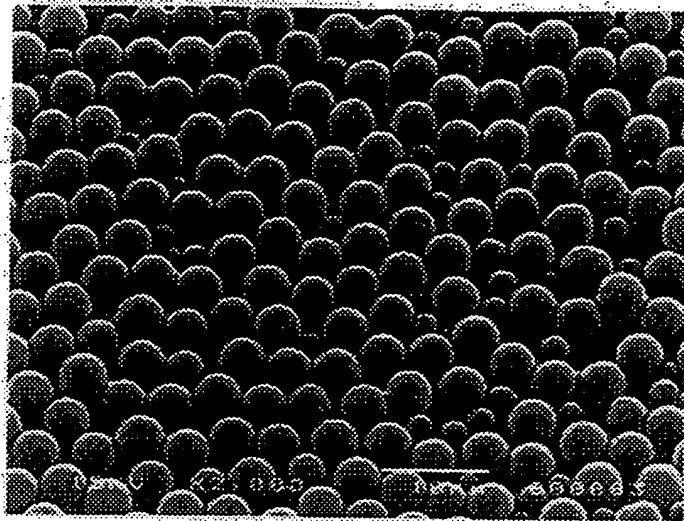


試料 4-3 のフィラーレンズの断面写真 (2000倍)

## 第 3 4 図

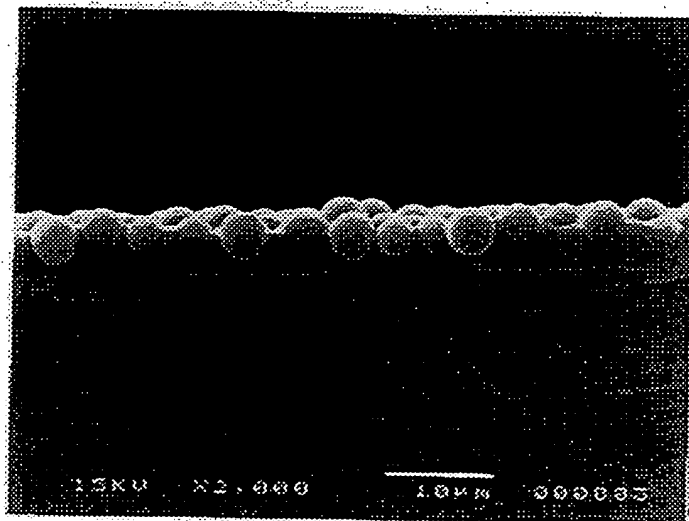
図面代用写真

(a)



試料 4-4 のフィラーレンズの平面写真 (2000倍)

(b)

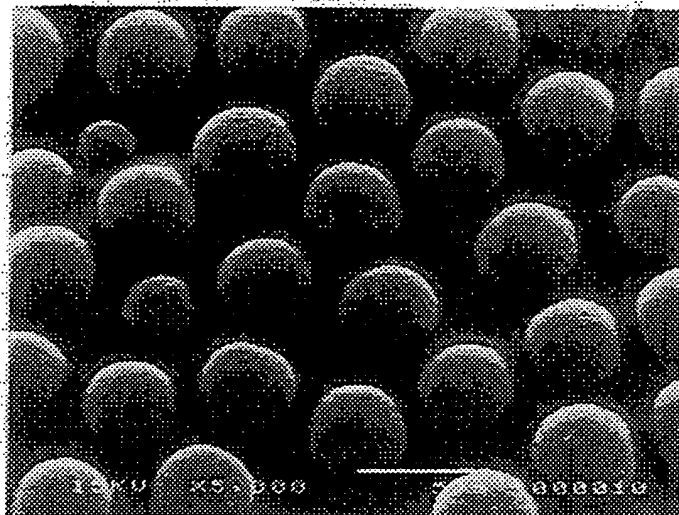


試料 4-4 のフィラーレンズの断面写真 (2000倍)

## 第 3 5 図

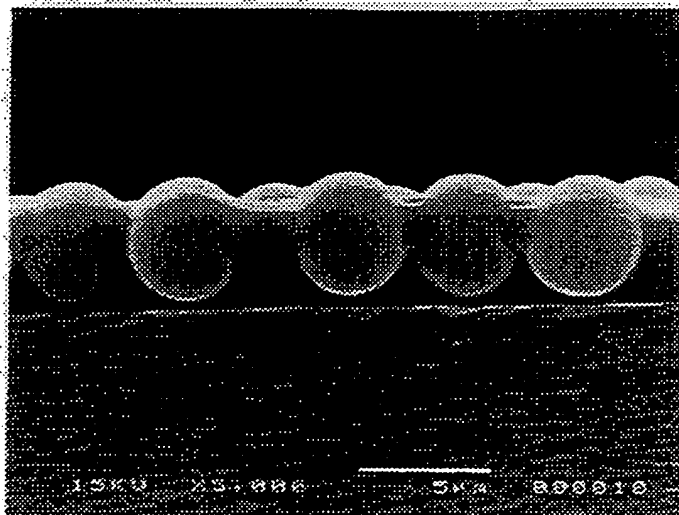
図面代用写真

(a)



試料 5 - 1 のフィラーレンズの平面写真 (5 0 0 0 倍)

(b)



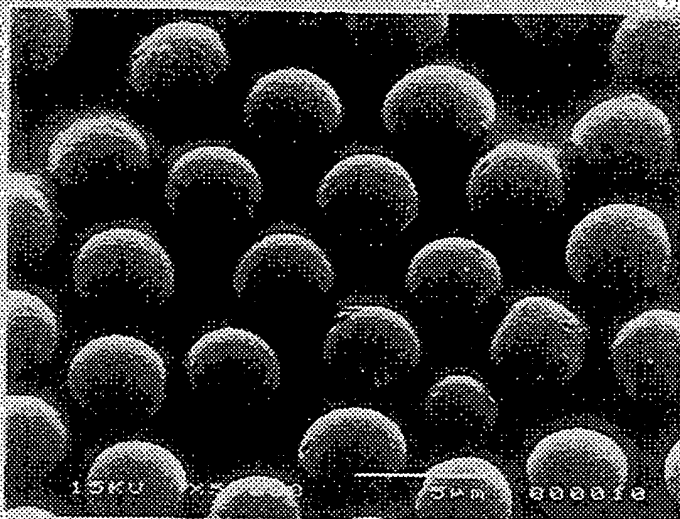
試料 5 - 1 のフィラーレンズの断面写真 (5 0 0 0 倍)



## 第 3 6 図

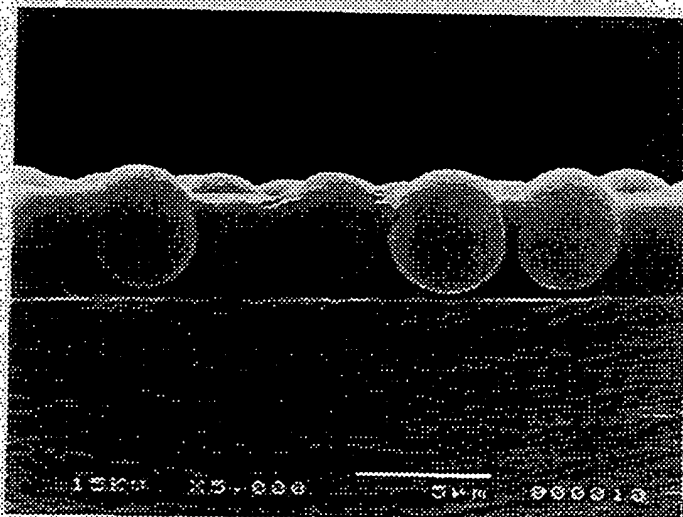
図面代用写真

(a)



試料 5-2 のフィラーレンズの平面写真 (5 0 0 0 倍)

(b)

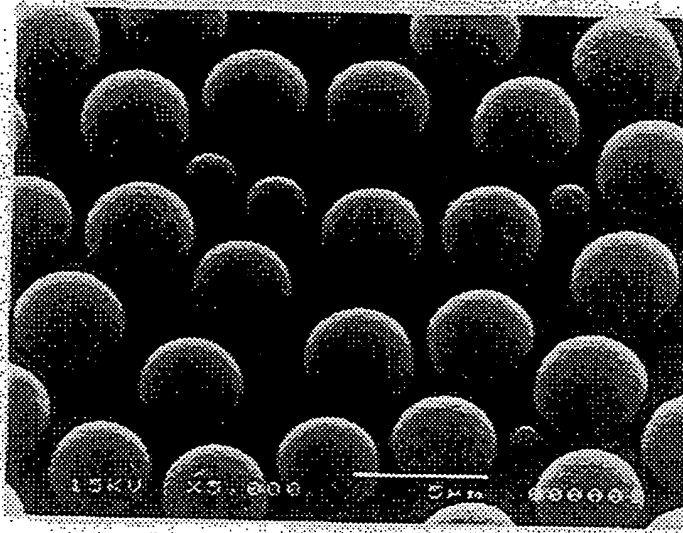


試料 5-2 のフィラーレンズの断面写真 (5 0 0 0 倍)

## 第 3 7 図

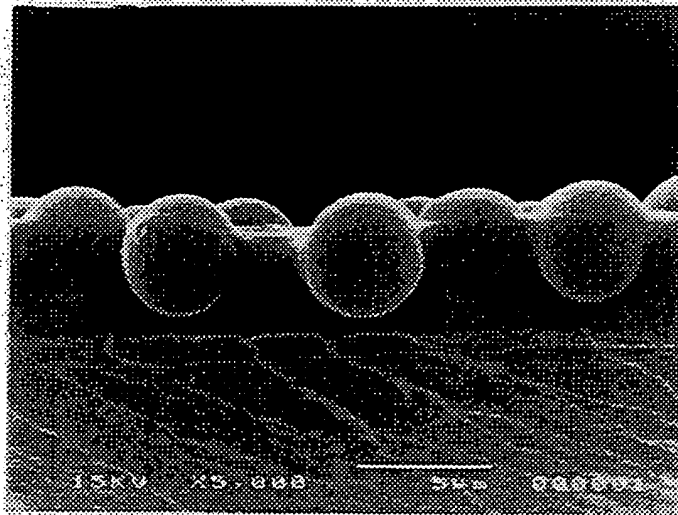
図面代用写真

(a)



試料 5 - 3 のフィラーレンズの平面写真 (5 0 0 0 倍)

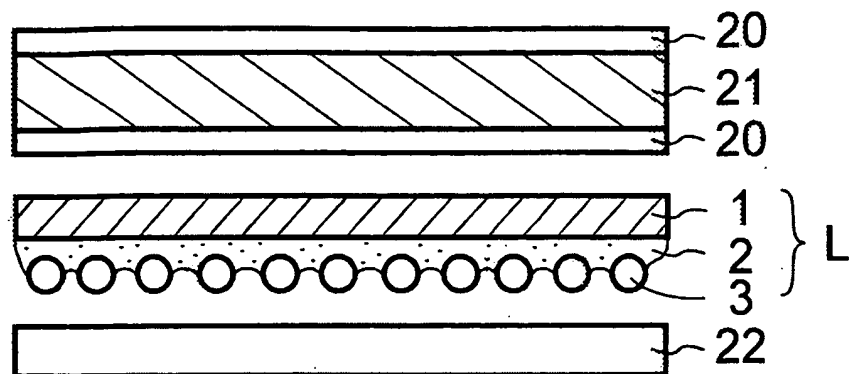
(b)



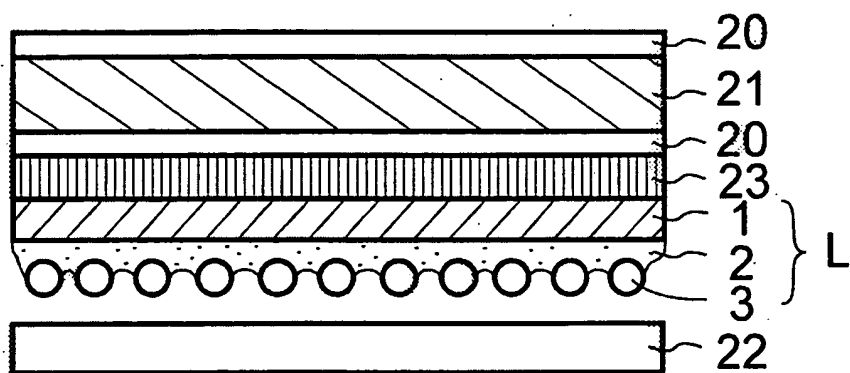
試料 5 - 3 のフィラーレンズの断面写真 (5 0 0 0 倍)

## 第 3 8 図

(a)

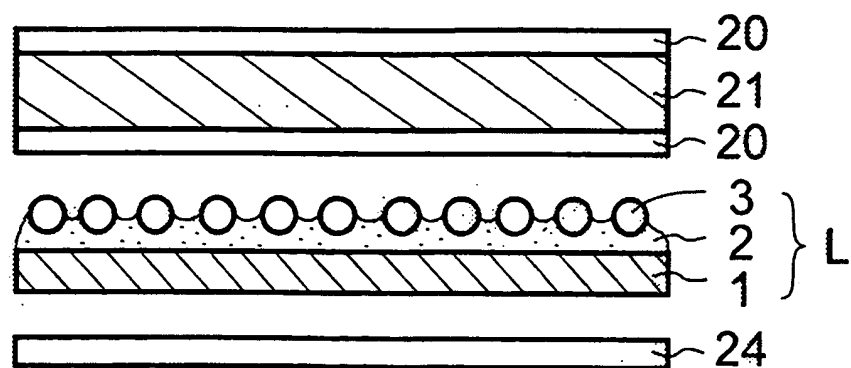


(b)

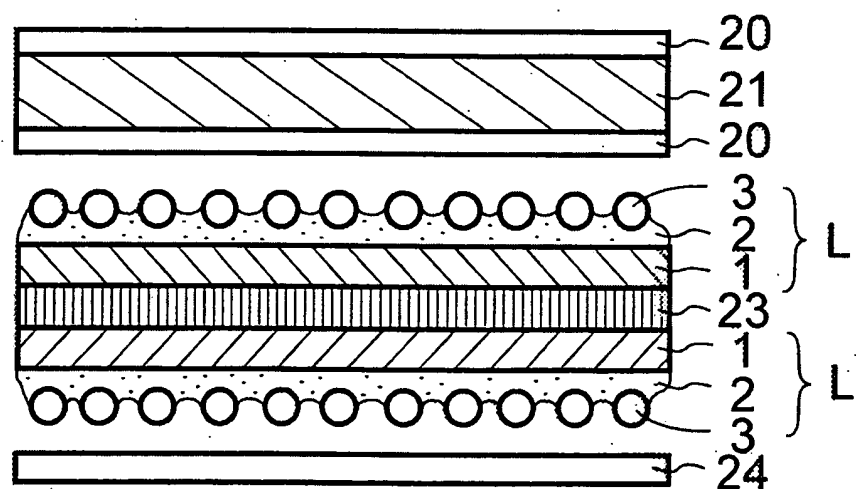


## 第 3 9 図

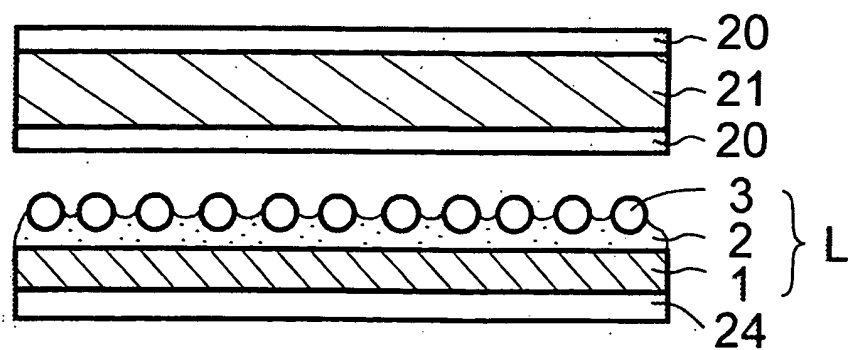
(a)



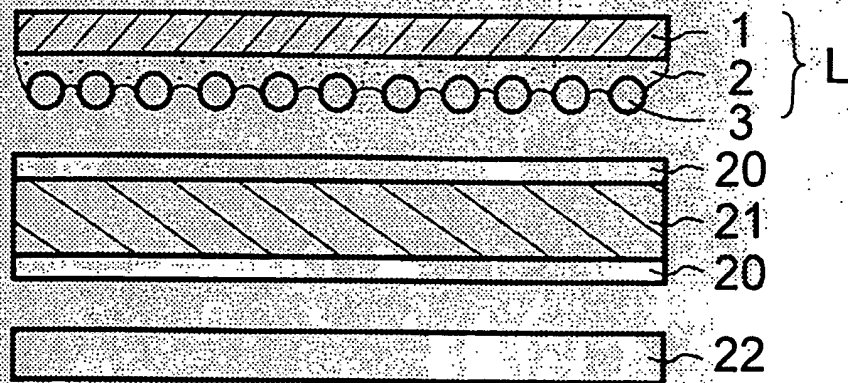
(b)



(c)



## 第40図



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP99/06703

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.<sup>7</sup> G02B5/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.<sup>7</sup> G02B5/02

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2000
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2000	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 10-48754, A (Sony Corporation), 20 February, 1998 (20.02.98), Par. Nos. [0024]-[0048]; Par. Nos. [0153] to [0160] Figs. 5 to 7 & KR, 97076052, A & CN, 1197937, A & TW, 346551, A	1-13, 41, 45-48
Y	JP, 10-206973, A (NITTO DENKO CORPORATION), 07 August, 1998 (07.08.98), Par. Nos. [0010]-[0046] (Family: none)	1-13, 41, 45-48
A	JP, 9-304604, A (NITTO DENKO CORPORATION), 28 November, 1997 (28.11.97), Full text; all drawings (Family: none)	1-3, 41 45-48

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

## \* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
04 February, 2000 (04.02.00)

Date of mailing of the international search report  
15 February, 2000 (15.02.00)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP99/06703

## Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
2. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
  
3. ☐ Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

## Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

1. The inventions of claims 1 to 13, 41, 45 to 48 relate to a filler lens comprising a filler layer formed on a bonding layer on a base in such a way that the fillers of the filler layer are embedded in the bonding layer and part of each of the fillers projects from the surface of the bonding layer and to a method for manufacturing the same. (The invention of claim 1 is well known. See, if necessary, JP,10-48754,A; JP,6-123802,A; JP,64-38678,U; JP,10-268428,A; JP,10-142406,A; JP,6-313813,A; JP,6-94904,A; JP,10-239504,A; JP,10-206973,A; JP,1-118803,A; and so forth.)

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
  
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
  
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
  
4. ☒ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

Continuation of Box No. II of continuation of first sheet (1)

2. The inventions of claims 14 to 19 relate to a filler lens comprising a filler layer formed on a bonding layer of a base in such a way that the fillers are embedded in the surface of the bonding layer, with part of the fillers projecting from the surface of the bonding layer and that the standard deviation of distances between particles is 0.4 or less.

3. The inventions of claims 20 to 26, 42 relate to a filler lens comprising a bonding layer formed on a base and having a gel fraction of more than 60% and a filler layer of which the fillers are embedded in the bonding layer, with part of each of the fillers projecting from the surface of the bonding layer, and to a method for manufacturing the same.

4. The inventions of claims 27 to 35, 43 relate to a filler lens comprising a bonding layer formed on a base and a filler layer of which the fillers are embedded in the bonding layer in such a way that part of each of the fillers projects from the surface of the bonding layer and a swell part of the bonding layer is provided around each of the fillers, and to a method for manufacturing the same.

5. The inventions of claims 36 to 40, 44 relate to a filler lens comprising a bonding layer formed on a base and cured by a curing agent subjected to curing limit and a filler layer of which the fillers are embedded in the bonding layer in such a way that part of each of the fillers projects from the surface of the bonding layer, and to a method for manufacturing the same.



## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> G02B5/02

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> G02B5/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2000年

日本国登録実用新案公報 1994-2000年

日本国実用新案登録公報 1996-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P, 10-48754, A (ソニー株式会社) 20. 2月. 1998 (20. 02. 98) 段落番号[0024]-[0048], [0153]-[0160] 図5-図7	1-13, 41, 45-48
Y	&KR, 97076052, A &CN, 1197937, A &TW, 346551, A J P, 10-206973, A (日東電工株式会社) 7. 8月. 1998 (07. 08. 98) 段落番号[0010]-[0046] (ファミリーなし)	1-13, 41, 45-48

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

04. 02. 00

国際調査報告の発送日

15.02.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

末政 清滋

2V

7617

電話番号 03-3581-1101 内線 6211

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 9-304604, A (日東電工株式会社) 28. 11月. 1997 (28. 11. 97) 全文、全図 (ファミリーなし)	1-3, 41 45-48

## 第Ⅰ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項 (PCT 17条(2)(a)) の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

## 第Ⅱ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

1. 請求の範囲 1-13, 41, 45-48 は、基体上の結着層の表面に一部突出する状態でフィラーを埋め込んだフィラー層を備えるフィラーレンズ及びその製造方法に関するものである。(請求項1の発明は周知、必要なら特開平10-48754, 特開平6-123802, 実開昭64-38678, 特開平10-268428, 特開平10-142406, 特開平6-313813, 特開平6-94904, 特開平10-239504, 特開平10-206973 特開平1-118803等参照)

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☐ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☒ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る請求の範囲 1-13, 41, 45-48 について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

(第1ページの続葉(1)の第II欄の続き)

2. 請求の範囲14-19は、基体上の結着層の表面に一部突出する状態で、粒子間距離の標準偏差が0.4以下であるようにフィラーを埋め込んだフィラー層を備えるフィラーレンズに関するものである。

3. 請求項20-26, 42は、基体上に、ゲル分率が60%以上の結着層を設け、その表面に一部突出する状態でフィラーを埋め込んだフィラー層を備えるフィラーレンズ及びその製造方法に関するものである。

4. 請求の範囲27-35, 43は、基体上に、結着層を設け、その表面に一部突出する状態でフィラーを埋め込み、フィラー周辺部に結着層の盛り上がり部分を設けたフィラー層を備えるフィラーレンズ及びその製造方法に関するものである。

5. 請求の範囲36-40, 44は、基体上に、硬化制限された硬化剤により硬化されている結着層を設け、その表面に一部突出する状態でフィラーを埋め込んだフィラー層を備えるフィラーレンズ及びその製造方法に関するものである。

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record.**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☐ **BLACK BORDERS**

☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**

☐ **FADED TEXT OR DRAWING**

☒ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**

☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**

☒ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**

☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**

☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**

☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**

☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**